PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

11-288807

(43) Date of publication of application: 19.10.1999

(51)Int.CI.

H01F 1/06 B₂₂F 1/00 B₂₂F B22F

C22C 38/00 H01F 1/08

(21)Application number: 11-028997

(71)Applicant: TODA KOGYO CORP

(22)Date of filing:

05.02.1999

(72)Inventor: HAMANO MASAAKI

YAMAZAKI MINORU

MIZUGUCHI HIROTAKA

(30)Priority

Priority number: 10 41074

Priority date: 06.02.1998

Priority country: JP

(54) FLAT LEAF-LIKE RARE EARTH-IRON-BORON MAGNET ALLOY PARTICLE POWDER FOR BONDED MAGNET, MANUFACTURE THEREOF AND THE BONDED MAGNET

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide flat leaf-like rare earth-iron-boron magnet alloy particle powder for a bonded magnet which is provided with a large residual magnetic flux density Br and high coercive force iHc with a large maximum magnetic energy product (BH)max, superior rustproof property and superior leafing effect, a manufacturing method and a bonded magnet, using the rare earth-iron-boron magnet alloy particle powder.

SOLUTION: This flat-leaf-like rare earth-iron-boron magnet alloy particle powder whose average long axis diameter is 60-500 μm, average short axis diameter of 50-460 μm, with average thickness of 3-100 μm, average axis ratio of 1.1-10 and average aspect ratio of 3-100 is obtained by heating and dissolving the coarse alloy of a rare earth-iron-boron type, turning it into a molten alloy, making it flow out from a nozzle, generating the liquid drop of the molten alloy by an atomizing gas to the flow-out molten alloy, cooling and solidifying it by making the liquid drop collide with the surface of a rotary cooling body of a conical shape or a disk shape, turning it into a rapidly cooled solidified particle powder, and then performing heat treatment in the temperature range of 500-850° C.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[JP,11-288807,A]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] It is the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder with which particle shape consists of a foliaceous particle of a flat tree. the object for bond magnets 1.1-10, and whose average aspect ratio (the diameter of a major axis / thickness) 3-100 micrometers and an average axial ratio (the diameter of a major axis / diameter of a minor axis) are [the diameter of an average major axis / 60-500 micrometers and the diameter of an average minor axis] 3-100 for 50-460 micrometers and average thickness -- flat -- leaves -- ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[Claim 2] The alloy presentation of a rare earth-iron-boron system magnet alloy particle is formula RxFe100-x-y-z-wCoyMzBw (however, R). A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and MA kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively 5<=x<=10, 1.0<=y<=9.0, 0.1<=z<=5, 2<=w<=7, 9<= (x+w), 5 ·· < (y+z) ·· the hard magnetism crystal phase which consists of the soft magnetism crystal phase and Nd2Fe14B1 mold tetragonal system crystal phase which have the presentation expressed and consist of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution, respectively It has the alloy organization which deposits in a soft magnetism amorphous phase, and, moreover, said soft magnetism amorphous phase is below 10 area % to all alloy organizations. Foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets according to claim 1 said whose soft magnetism crystal phase is more than 10 area % to all the crystalline structures that doubled said soft magnetism crystal phase and said hard magnetism crystal phase and whose remainder is said hard magnetism crystal phase.

[Claim 3] Foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat [coercive force iHc / 3.5 or more kOes and a residual magnetic flux density Br / 9.5 or more kGs and maximum magnetic energy (product BH) max] tree for the bond magnets according to claim 1 or 2 which is 13 or more MGOes. [Claim 4] Formula RxFe100-x-y-z-wCoyMzBw (however, R) A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively 5<=x<=10, 1.0<=y<=9.0, 0.1<=z<=5, 2<=w<=7, 9<= (x+w), 5 ·· < (y+z) ·· the presentation expressed ·· the rough alloy manufactured so that it might become comparatively After carrying out the heating dissolution and considering as an alloy molten metal, the alloy molten metal concerned is made to flow out of a nozzle.

The drop of an alloy molten metal is made to generate by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned. It considers as the quenching congelation particle powder which is made to carry out cooling coagulation and consists of a foliaceous particle of a flat tree by making this drop collide with the front face of the rotation cooling object of the cone mold arranged in the flow direction of the drop concerned, or a disk mold before the drop concerned congeals. Subsequently The manufacturing method of the foliaceous rare earth iron boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets according to claim 1 to 3 characterized by heat-treating the quenching congelation particle powder concerned in a 600-850-degree C temperature requirement.

[Claim 5] the object for bond magnets according to claim 1 to 3 ·· flat ·· leaves ·· the bond magnet which comes to distribute ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder in binder resin ·· it is ·· being concerned ·· flat ·· leaves ·· the bond magnet with which ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is characterized by 85 · 99% of the weight of the thing which it comes out comparatively and is mixed.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the bond magnet which used this rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder for the big residual magnetic flux density Br, 9.5 or more kGs and the high coercive force iHc, the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets that had 3.5 or more kOes, consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature especially, and was excellent in the leafing effectiveness, and its manufacturing method list especially.

[0002]

[Description of the Prior Art] Although it is widely used for various applications, such as an electric product and autoparts, from the former since a bond magnet has advantages, such as the configuration free nature, high dimensional accuracy, etc., the miniaturization of the bond magnet itself used for this is strongly demanded with small and lightweight-izing of an electric product or autoparts in recent years.

[0003] For the miniaturization of a bond magnet, it has magnetic high performance ization, i.e., the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently it is required strongly that maximum magnetic energy (product BH) max should be large.

[0004] As everyone knows, since ferrite powder is oxide, and it excels in corrosion resistance and is manufactured using cheap raw materials, such as oxide, such as barium and strontium, and a ferric acid ghost, the bond magnet (henceforth a "ferrite bond magnet") using magnetoplumbite type ferrites, such as a barium ferrite and a strontium ferrite, is used economically and widely.

[0005] However, the magnetic properties of this ferrite bond magnet do not usually have a residual magnetic flux density Br enough for small [of the device used by 2 · 3kOe extent and maximum magnetic energy (product BH) max, being 1.6 · 2.3MGOe extent], and lightweight[2 · 3kG extent and coercive force iHc]-izing.

[0006] The demand to magnetic high-performance-izing and magnetic low-pricing does not have the place which remains, since the Nd-iron-boron system magnet alloy using Nd which is a low price comparatively also among rare earth elements was mostly developed by Sumitomo Special Metals Co., Ltd. and U.S. General Motors at coincidence in 1982, it is widely applied to various applications and expansion to a bond magnet has also been performed. In quest of improvement in the magnetic properties, development of a rare earth-iron-boron system exchange spring magnet alloy is still more prosperous, and the part is already put in practical use.

[0007] It is expected as what has high possibility of becoming the magnet which said exchange spring magnet is the exchange interaction of iron (alphaFe) or an iron compound, and a Nd2Fe14B1 mold tetragonal compound showing a magnetic spring phenomenon, and the description having a low rare earth content and the big residual magnetic flux density Br, and was excellent in cost performance.

[0008] That is, since the rare earth-iron-boron system exchange spring magnet alloy of under 10 atom % can reduce the content of expensive rare earth with the high and potential on magnetic properties compared with the rare earth-iron-boron system magnet alloy of 10 - 15 atom % with the amounts of rare eds 10 is inadequate, and the high residual magnetic flux density beyond Br>=10kG is not obtained and Motors developed, the amounts of rare earth, such as Nd, have the description of being economical.

[0009] There are a system to which said amounts of rare earth, such as Nd, contain alphaFe in the rare earth-iron-boron system exchange spring magnet alloy of under 10 atom % as a soft magnetism phase, and a system containing Fe3B or Fe2B. Although the residual magnetic flux density Br of the former is generally as large as 10-13kG, coercive force iHc is as low as at most less than 3.5 kOes, and although coercive force iHc of the latter is generally comparatively as high as 3.5-7.7kOe, since a residual magnetic flux density Br is below 10kG extent, although a residual magnetic flux density Br is large compared with "MQP", compared with alphaFe subject system, it is low.

[0010] By the way, in fields, such as a small motor which are the main applications of the bond magnet using a rare earth-iron-boron system magnet alloy, to be the magnetic properties which were able to balance a residual magnetic flux density Br and coercive force iHc, i.e., for a residual magnetic flux density Br to be [9.5 or more kGs and coercive force iHc] 3.5 or more kOes, is strongly demanded from a viewpoint of the miniaturization of a motor, and the magnetic stability of the magnet used.

[0011] Moreover, the magnet alloy containing rare earth, such as Nd, oxidizes in air, tends to generate a stable oxide gradually, and has the fault of being inferior to rust-proofing nature. Therefore, since corrosion resistance is inferior, as for the bond magnet manufactured using the magnet alloy containing rare earth, such as Nd, it is common that rust-proofing coatings, such as dipping of a resin system, spray coating, electropainting, or metal plating, are generally performed.

[0012] Therefore, if the rust-proofing nature of the magnet alloy containing rare earth, such as Nd, improves, since it can expect that it also sets for the above applications, and rust-proofing coating of a bond magnet front face can be simplified or saved labor and rust-proofing coating may be able to be omitted depending on an application, improvement in the rust-proofing nature of a rare earth-iron-boron system magnet alloy is demanded strongly.

[0013] Moreover, although a bond magnet is usually manufactured by scouring magnet powder and fabricating it in binder resin, if the configuration of magnet powder is a thin film integrated circuit, it is known that machine orientation can be carried out easily and the pack density to the inside of binder resin can be raised. However, even if it is a thin film integrated circuit particle, in having the curved field, it becomes difficult to fully raise pack density, namely, although applications differ JP,2·34706,A····. generally as powder for coatings, it is supposed that the thing of a thin film integrated circuit is desirable. That is, when powder is mixed to the resin for coatings and it applies by brush coating, a spray, etc., it is because powder carries out a laminating to the painted surface at parallel (this is called leafing phenomenon), the continuous coat by powder is formed, a material is intercepted from the open air and better corrosion resistant weatherability is given with the surface tension produced at the time of hardening of resin. ..." in manufacture of a bond magnet, particle shape is not a curved surface as a

publication •• flat •• leaves •• it becomes possible for the saturation magnetic flux density Br of a bond magnet to improve, since the pack density of the powder in a bond magnet can be easily raised according to the leafing effectiveness by using the magnet alloy particle powder which consists of a particle of a **, as a result to raise maximum magnetic energy (product BH) max. Then, rare earth magnet alloy particle powder with which the particle shape excellent in the leafing effectiveness consists of a foliaceous particle of the flat tree which is not a curved surface is desired.

[0014] That is, the foliaceous rare earth iron boron system magnet alloy particle powder of the flat tree which had the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust proofing nature, and was excellent in the leafing effectiveness is demanded strongly.

[0015] In addition, in the quenching permanent magnet ingredient which uses Fe as a principal component (however, it is under 91 atom %.), and contains one sort or two sorts or more of rare earth elements (R) and boron (B), the permanent magnet ingredient with which the remainder consists of a crystalline substance phase containing a R-Fe-B system hard magnetism compound including the soft magnetism amorphous phase below 10 area % is well-known (JP,8-162312,A).

[0016]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Although the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder which had the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature, and was excellent in the leafing effectiveness is [current and] just going to be demanded most, the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder which has such a property is not yet obtained.

[0017] namely, the above — a rare earth-iron-boron system magnet alloy given in JP,8-162312,A the "Table 5" of this official report — a residual magnetic flux density Br — 0.62-0.97T (it is equivalent to 6.2-9.7kG.) Extent and coercive force iHc are 0.16 — 0.21 MA/m (it is equivalent to 1.25-2.6kOe.). Extent and maximum magnetic energy (product BH) max are 19.7 - 72.0 kJ/m3 (it is equivalent to 2.5 - 9.0MGOe.). as being indicated as extent — coercive force iHc — at most — 3kOe extent and the residual magnetic flux density Br were as low as 10kG extent at most.

[0018] the above -- after a rare earth-iron-boron system magnet alloy given in the examples 2-4 of JP,8-162312,A grinds a quenching thin band, it is the bulk object acquired by carrying out extrusion in the vacuum, and is applied to this invention -- flat -- leaves -- a gestalt is different from ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0019] Then, this invention makes it a technical technical problem to obtain the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets which had the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently whose maximum magnetic energy (product BH) max was large, and was excellent in rust-proofing nature, and was excellent in the leafing effectiveness.

[0020]

[Means for Solving the Problem] This invention as follows can attain said technical technical problem. [0021] Namely, this invention is rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder with which particle shape consists of a foliaceous particle of a flat tree. 50-460 micrometers and average thickness 3-100 micrometers, [the diameter of an average major axis] [60-500 micrometers and the diameter of an

average minor axis] the object for bond magnets 1.1-10, and whose average aspect ratio (the diameter of a major axis / thickness) an average axial ratio (the diameter of a major axis / diameter of a minor axis) is 3-100 ·· flat ·· leaves ·· it is ** rare earth iron boron system magnet alloy particle powder.

[0022] Moreover, for this invention, the alloy presentation of a rare earth-iron-boron system magnet alloy particle is formula RxFe100-x-y-z-wCoyMzBw (however, R). A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively 5<=x<=10, 1.0<=y<=9.0, 0.1<=z<=5, 2<=w<=7, 9<= (x+w), 5 ··· < (y+z) ··· the hard magnetism crystal phase which consists of the soft magnetism crystal phase and Nd2Fe14B1 mold tetragonal system crystal phase which have the presentation expressed and consist of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution, respectively It has the alloy organization which deposits in a soft magnetism amorphous phase, and, moreover, said soft magnetism amorphous phase is below 10 area % to all alloy organizations. It is the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of said flat tree for bond magnets said whose soft magnetism crystal phase is more than 10 area % to all the crystalline structures that doubled said soft magnetism crystal phase and said hard magnetism crystal phase and whose remainder is said hard magnetism crystal phase.

[0023] Moreover, this invention is the foliaceous rare earth iron boron system magnet alloy particle powder of the flat [coercive force iHc / 3.5 or more kOes and a residual magnetic flux density Br] tree for said bond [one 9.5 or more kGs and whose maximum magnetic energy (product BH) max are 13 or more MGOes of] magnets.

[0024] Moreover, this invention is formula RxFe100·x·y·z·wCoyMzBw (however, R). A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w Respectively 5<=x<=10, 1.0<=y<=9.0, 0.1<=z<=5, 2<=w<=7, 9<= (x+w), 5 ·· < (y+z) ·· the presentation expressed ·· the rough alloy manufactured so that it might become comparatively After carrying out the heating dissolution and considering as an alloy molten metal, the alloy molten metal concerned is made to flow out of a nozzle. The drop of an alloy molten metal is made to generate by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned. It considers as the quenching congelation particle powder which is made to carry out cooling coagulation and consists of a foliaceous particle of a flat tree by making this drop collide with the front face of the rotation cooling object of the cone mold arranged in the flow direction of the drop concerned, or a disk mold before the drop concerned congeals. Subsequently It is the manufacturing method of the foliaceous rare earth iron-boron system magnet alloy particle powder of one which is characterized by heat-treating the quenching congelation particle powder concerned in a 600-850-degree C temperature requirement of said flat trees for bond magnets.

[0025] moreover, this invention — said object for one of bond magnets — flat — leaves — the bond magnet which comes to distribute ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder in binder resin — it is — being concerned — flat — leaves — ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is the bond magnet characterized by 85 — 99% of the weight of the thing which it comes out comparatively and is done for mixed combination.

[0026] It will be as follows if the configuration of this invention is explained in more detail.

[0027] First, the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for

bond magnets concerning this invention is described.

[0028] The flat tree of the particle shape of the particle which constitutes the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder for bond magnets concerning this invention is foliaceous. Preferably the diameter of an average major axis of the powder concerned 60-500 micrometers 80-500 micrometers, It is 100-500 micrometers more preferably. The diameter of an average minor axis 50-460 micrometers, 70-460 micrometers is 85-460 micrometers more preferably. It is 1.1-3 more preferably, average thickness -- 3-100 micrometers -- desirable -- 5-95 micrometers -- it is -- an average axial ratio (the diameter of a major axis / diameter of a minor axis) -- 1.1-10 -- desirable -- 1.1-5 -- an average aspect ratio (the diameter of a major axis / thickness) -- 3-100 -- desirable -- 3-50 -- it is 3-30 more preferably.

[0029] The alloy presentation of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is described.

[0030] Said alloy presentation is expressed with formula RxFe100-x-y-z-wCoyMzBw. R is a kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce, or two sorts or more among a formula. If a residual magnetic flux density Br and coercive force iHc are taken into consideration, that with which other rare earth elements were mixed by Nd, Pr, a Nd-Pr alloy, and these is desirable, and Nd and Pr are the most desirable. However, even if rare earth elements other than the above are contained below 10 atom % to the total amount of rare earth, it does not interfere.

[0031] the amount of R ·· 5<=x<=10 ·· it is ·· desirable ·· 5.5<=x<=9 ·· it is 6<=x<=8 more preferably. The amount of deposits of a hard magnetism crystal phase which consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal-system crystal phase when x is less than five is inadequate, the amount of deposits of a soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution when coercive force is not set to 3.5 or more kOes but exceeds 10 is inadequate, and the high residual magnetic flux density beyond Br>=10kG is not obtained.

[0032] The amount of Fe(s) is expressed with 100-x-y-z-w, and is 69 · 86% of range to all atoms. A residual magnetic flux density Br decreases in less than 69% of case, and 9.5 or more kGs made into the purpose of this invention are not obtained at it. When exceeding 86%, the amount of R and the amount of Co(es) will decrease relatively, and the coercive force iHc made into the purpose of this invention is not acquired for 3.5 or more kOes.

[0033] Co is an indispensable element which brings about improvement in coercive force, increase of magnetization, the improvement in rust proofing nature, and improvement in the thermal stability by the rise of the Curie point with M element.

[0034] the amount of Co(es) ·· 1.0<=y<=9.0 ·· it is ·· desirable ·· 1.5<=y<=9.0 ·· it is 2.0<=y<=9.0 more preferably. The rise of coercive force or the Curie point is not enough for the case of less than 1.0, and it is inferior to thermal stability. When exceeding 9.0, the fall of the residual magnetic flux density Br by reduction of an iron component becomes remarkable, and 10 or more kGs are not obtained.

[0035] M is an element more than a kind chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si, can raise the crystal magnetic anisotropy of a hard magnetism crystal phase which consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal-system crystal phase, and can acquire high coercive force according to the detailed-ized effectiveness of a deposit phase. Moreover, the soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution can be stabilized, and the corrosion resistance of a

bond magnet and thermal stability can be improved.

[0036] Among said M elements, Mn, Cu, Ga, Ag, and Si can acquire higher coercive force according to the synergistic effect, if it adds with other M elements.

[0037] the amount of M element · 0.1<=z<=5 · it is · desirable · 0.2<=z<=4 · it is 0.3<=z<=3.5 more preferably. It is deficient in the improvement effectiveness of coercive force, as a result inferior to the case of less than one at thermal stability. In exceeding 5, it causes the reduction of Br by reduction of an iron system component (Fe, Co).

[0038] Among said M elements, while Ti, Zr, Nb, Hf, Ta, Si, and Ga contribute to improvement in coercive force, it can be easy to form an amorphous phase, an amorphous phase can remain in stability during an alloy organization, the magnet alloy particle powder with which rust-proofing nature was demonstrated can be obtained, and the bond magnet excellent in corrosion resistance is obtained by using this.

[0039] an element indispensable since B constitutes the hard magnetism crystal phase which consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal system crystal phase — it is — the amount — 2<=w<=7 — it is — desirable — 2.5<=w<=6.5 — it is 3<=w<=6.5 more preferably. The amount of deposits of a hard magnetism crystal phase which consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal system crystal phase becomes inadequate for the case of less than two, and it is not set to iHc>=3.5kOe. In exceeding 7, B becomes superfluous and causes reduction of a residual magnetic flux density Br.

[0040] The sum of the amount of R and the amount of B is 9<= (x+w), and is ten or more preferably. Sufficient soft magnetism amorphous phase by quenching is not formed in the case of less than nine, and heat treatment cannot realize iHc>=3.5kOe to it, either. If it takes into consideration holding the big residual magnetic flux density Br, as for the upper limit, 18 will be desirable, and it will be 17 more preferably.

[0042] The alloy organization of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is described.

[0043] The particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention has the soft magnetism amorphous phase below 9 area % preferably below 10 area % to all alloy organizations. The lower limit of a soft magnetism amorphous phase is 1 area %.

[0044] As a result of magnetic association by the magnetic exchange interaction committed between bi-phases being able to weaken since distance with a soft magnetism crystal phase or a hard magnetism crystal phase becomes large when a soft magnetism amorphous phase exceeds 10 area % in the two-dimensional observation visual field of all alloy organizations, the effectiveness of raising a magnet property rather is not acquired. If said rust-proofing effectiveness of a soft magnetism amorphous phase is taken into consideration, the lower limit will be 1 area % preferably.

[0045] a soft magnetism amorphous phase - eight to 20 atom % - desirable - the rare earth of 9 · 15 atom %, and 70 to 90 atom % - it consists of boron of 5 · 18 atom % preferably the iron of 70 · 85 atom % or iron, an alloy with the above mentioned element M, and below 22 atom %. Since this soft magnetism amorphous phase can control big and rough growth of crystal grain and can make a detailed crystal phase

form in heating down stream processing for crystallization while it has soft magnetism, it can raise the hard magnetism of the whole alloy.

[0046] Moreover, since each of a soft magnetism crystal phase and a hard magnetism crystal phase is carrying out the distributed deposit into the soft magnetism amorphous phase at the shape of an island, since this soft magnetism amorphous phase encloses the perimeter of the soft magnetism crystal phase which mainly bears a magnetic role, or a hard magnetism crystal phase and it controls advance of oxidization, it can do so the effectiveness as a barrier which can prevent advance of rust, and can raise the rust-proofing nature of a magnet alloy particle.

[0047] A soft magnetism amorphous phase can also expect enough effectiveness, such as a mechanical strength which an amorphous phase usually has, chemical resistance, and rust-proofing nature.

[0048] The soft magnetism crystal phase in the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution, and is included more than 10 area % to all the crystalline structures that doubled the soft magnetism crystal phase and the hard magnetism crystal phase. The soft magnetism crystal phase has contributed to improvement in a residual magnetic flux density Br. In the case of under 10 area %, the magnet alloy particle powder which has the big residual magnetic flux density Br made into the purpose of this invention cannot be obtained. If the ratio of the hard magnetism crystal phase which bears the role which raises coercive force iHc is taken into consideration, the upper limit has desirable 90 area %.

[0049] The diameter of average crystal grain of a soft magnetism crystal phase has desirable 5-100nm, and it is the range of 10-50nm more preferably.

[0050] In a soft magnetism crystal phase, in addition to one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution, Fe3B, Fe2B and the solid solution of these and M ·· further ·· the intermetallic compound of Fe and M, such as Fe2Zr, ·· a state diagram ·· although it may be contained unescapable on a production process-like, when obtaining the magnet alloy particle powder which has many properties made into the purpose of this invention, especially a problem does not become.

[0051] The hard magnetism crystal phase in the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal-system crystal phase, and is under 90 area % to all the crystalline structures.

[0052] When exceeding 90 area %, a soft magnetism crystal phase decreases and the big residual magnetic flux density Br is not obtained. If the coercive force iHc value made into the purpose of this invention is taken into consideration, the lower limit has desirable 10 area %. It is 20 to 85 area % more preferably.

[0053] Said hard magnetism crystal phase does so the effectiveness of making coercive force iHc discovering. Moreover, a part of M element enters into this hard magnetism crystal phase, raises an anisotropy constant, and may raise coercive force as a result.

[0054] The minute compound phase which deposits impossibly in state diagram besides a Nd2Fe14B1 mold compound may be included in the hard magnetism crystal phase.

[0055] The diameter of average crystal grain of a hard magnetism crystal phase has desirable 5-100nm or

less, and it is the range of 10-50nm more preferably.

[0056] 9.5 or more kGs of residual magnetic flux densities Br are 10.0 or more kGs preferably, 3.5 or more kOes of coercive force iHc have 4.0 or more kOes preferably, and, as for the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention, 13 or more MGOe(s) of maximum magnetic energy (product BH) max(es) have 15 or more MGOes preferably. For a residual magnetic flux density Br, 13kG(s) and coercive force iHc are [8kOe(s) and maximum magnetic energy (product BH) max of the upper limit] 25MGOe(s). In addition, among the magnetic properties of the above mentioned powder, it was computed by having carried out the density correction of the Br from Br of a green compact, and also performed count of (BH) max using this Br.

[0057] Moreover, the rust proofing nature of the foliaceous rare earth iron boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is JIS. Z Preferably, elapsed time until rusting occupies 10 area % is 60 hours or more more preferably, and as shown in a back appearance example compared with the conventional Nd Fe B system alloy particle powder, it is clearly excellent by the salt spray test method based on 2371, for 55 hours or more for at least 50 hours or more. [0058] Next, the manufacturing method of the foliaceous rare earth iron boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention is described.

[0059] First, formula RxFe100-x-y-z-wCoyMzBw (however, R) A kind of the rare earth elements chosen from Nd, Pr, Dy, Tb, and Ce or two sorts or more, and M A kind of the element chosen from Ti, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, Ga, and Si or two sorts or more, x, and y, z and w A metal-like element raw material and/or an alloy-like raw material are blended, and the heating dissolution of this is carried out so that it may become comparatively respectively $\cdot\cdot\cdot$ 5<=x<=10, 1<=y<=9, 0.1<=z<=5, 2<=w<=7, 9<=(x+w), and 5 $\cdot\cdot\cdot$ < (y+z) $\cdot\cdot\cdot$ the presentation expressed $\cdot\cdot\cdot$ subsequently The rough alloy of the above-mentioned presentation is obtained by carrying out cooling solidification.

[0060] As said metal-like element raw material, that what is necessary is just to use a commercial thing, the gestalt has the thing of various gestalten, such as the shape of powder, mass, and a piece, and tabular, and the all can be used for it.

[0061] As said alloy-like raw material, there are ferro NEOJI, a misch metal, didym, etc. by ferroboron and rare earth elements by the boron element that what is necessary is just to use a commercial thing. The gestalt has the thing of various gestalten, such as the shape of powder, mass, and a piece, and tabular, and the all can be used for it.

[0062] It is desirable to be able to perform said heating dissolution with a well-known arc solution process, a RF solution process, etc., and to carry out in inert atmospheres, such as inside of a vacuum and argon gas.

[0063] Next, carry out the heating dissolution of said obtained rough alloy, consider as an alloy molten metal, and, subsequently the alloy molten metal concerned is made to flow out of a nozzle. The drop of an alloy molten metal is made to generate by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned. It considers as the quenching congelation particle powder which is made to carry out cooling coagulation and consists of a foliaceous particle of a flat tree by making this drop collide with the front face of the rotation cooling object of the cone mold arranged in the drop flow direction concerned, or a disk mold before the drop concerned congeals. Subsequently If the quenching congelation particle powder concerned is crystalized by heat-treatment, the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention can be obtained.

[0064] As for said melting temperature, it is [that what is necessary is just to decide according to an alloy presentation] desirable to usually heat at temperature higher 50 degrees C or more than the melting point of said rough alloy.

[0065] As said gas to spray, inert gas is desirable, for example, is gaseous helium, argon gas, etc. It is argon gas preferably, the pressure of the gas to spray - 5 · 200 kgf/cm2 - it is 10 · 100 kgf/cm2 preferably. When exceeding 200 kgf/cm2, by the time a cooling rate becomes quick too much and a drop reaches a rotation cooling object, cooling coagulation may arise.

[0066] The configuration of said rotation cooling object is a cone mold or a disk mold. It is the cone mold which the desirable foliaceous particle of a flat tree tends to obtain. Moreover, the rotational frequency of said rotation cooling object is 3000 · 12000rpm preferably 1000 to 20000 rpm. When a rotational frequency is less than 1000 rpm, the quenching congelation particles obtained become easy to lap, it may become a massive particle, and cooling coagulation by quenching is not fully performed, but generating [of a soft magnetism amorphous phase] becomes inadequate. Moreover, the consistency of the magnet powder of a bond magnet is no longer obtained fully. In addition, when making the drop of an alloy molten metal collide with the rotation cooling object of a disk mold, as for the collision place, it is desirable to consider as the part shifted a little to the circumferencial direction from the revolving shaft of the rotation cooling object of a disk mold.

[0067] Moreover, the heating dissolution of said rough alloy, cooling solidification and the heating dissolution for the second time, and cooling coagulation with a rotation cooling object may be continuously performed within the same equipment as occasion demands.

[0068] In addition, cooling coagulation with a rotation cooling object may be directly performed within the same equipment from the heating dissolution of each raw material of said metal-like element raw material and/or said alloy-like raw material, without carrying out cooling solidification in advance.

[0069] In addition, in cooling coagulation with a rotation cooling object, since the drop formed in early stages tends to become comparatively large, it is desirable not to extract the quenching congelation particle powder obtained in early stages, or to remove a big and rough particle by a classification etc. subsequently. Moreover, since the drop formed micrifies and also atomizes the quenching congelation particle powder obtained when the alloy molten metal which remains has decreased, as for the quenching congelation particle powder obtained just before termination, it is desirable not to extract or to remove a particle component by a classification etc.

[0070] The particle which constitutes the quenching congelation particle powder obtained by cooling coagulation with said rotation cooling object mainly includes an amorphous alloy organization.

[0071] This amorphous alloy organization shows a broadcloth peak according to an X diffraction, and can check with the halo pattern of the electron diffraction by the transmission electron microscope (TEM). In addition, to include a crystal phase partially without obtaining an amorphous alloy organization 100% depending on an alloy presentation, but since the purpose of this invention can be attained, what is necessary is just sufficient amount.

[0072] This amorphous alloy organization has soft magnetism, and in order that it may control big and rough growth of crystal grain and may enable formation of a detailed crystal phase in the heat treatment process for crystallization with that magnetic role, it is bearing the important role which raises the hard magnetism of the whole alloy.

[0073] Said heat-treatment is performed in a 600-850-degree C temperature requirement. In the case of

less than 600 degrees C, the hard magnetism crystal phase which consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal system crystal phase does not deposit enough, and the coercive force of 3.5 or more kOes is not acquired. When exceeding 850 degrees C, the big and rough growth of a soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution becomes remarkable, the ratio of the soft magnetism amorphous phase in which it is hard coming to be discovered of coercive force, and it remains falls remarkably, and rust-proofing nature becomes is hard to be demonstrated. In addition, what is necessary is just to choose suitably the optimal heating temperature for discovering good magnetic properties according to the alloy presentation of quenching congelation particle powder.

[0074] Although there will be especially no problem if the ambient atmosphere in said heat-treatment is range which does not spoil the magnetic properties of the magnet alloy particle powder obtained, the inside of inert atmospheres, such as argon gas, or the vacuum of 10 to 1 or less Torr is desirable.

[0075] The heating time in said heat-treatment has 10 desirable seconds or more at least, the deposit of soft magnetism crystal phase sufficient in less than 10 seconds and a hard magnetism crystal phase should do -- as for the coercive force of 3.5 or more kOes, all tend to be obtained in order that a soft magnetism crystal phase may carry out big and rough growth, if there is an inclination which is not, and less than 1 hour is desirable in it being long and 1 hour is surpassed.

[0076] A crystal phase is generated from an amorphous phase by said heat-treatment. It is required to heat so that the amorphous phase below 10 area % may be made to remain to all alloy organizations, without making an amorphous phase into a crystal phase completely at this time.

[0077] As conditions for leaving an amorphous phase, it is necessary to set up the conditions of said heat-treatment so that a deposit and growth of a crystal phase may not result extensively. Moreover, since stabilization of an amorphous phase and growth suppression of a deposit phase can also be planned according to the effectiveness of an alloying element M, a setup of a suitable alloy presentation is also important. As an example of a heating approach, the flash plate annealing method and the rapid heating-cooling method are mentioned, and the usual heat-treating method is also enough depending on an alloy presentation.

[0078] the abundance of the amorphous phase which remains - desirable - one to 10 area % - it is below 9 area % more preferably. It is because magnetic association resulting from the exchange interaction committed between an amorphous phase and a crystal phase or among crystal phases can weaken under by 1 area % when the effectiveness made into the aforementioned purpose is not acquired, and improvement in the rust-proofing engine performance cannot be expected, either but it exceeds 10 area %. [0079] Next, the bond magnet concerning this invention is described.

[0080] The bond magnet concerning this invention comes to distribute the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention in binder resin, and, in addition to this, 85 - 99 % of the weight and the remainder serve as [the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of this flat tree] binder resin from an additive. Although it changes a little with fabricating methods, in the case of an injection molding bond magnet, its 96 · 98.5 % of the weight is more desirable, and when it is a calender shaping bond magnet, to it, 85 · 90 % of the weight is desirable [the desirable rate of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention / 88 · 93 % of the weight is desirable, and / when it is an extrusion-molding bond magnet, 85 ·

92 % of the weight is desirable and / when it is a compression molding bond magnet, 95 · 98.5 % of the weight is desirable and].

[0081] 7.0 or more kGs of residual magnetic flux densities Br are 7.2 or more kGs preferably, 3.5 or more kOes of coercive force iHc have 3.7 or more kOes preferably, maximum energy product (BH) max has 9.7 or more MGOes, and, as for the bond magnet concerning this invention, 9.5 or more MGOes of consistencies have three or more [6.1g //cm] preferably.

[0082] In addition, under the environment of 80 degrees C and 90% relative humidity, at least 120 hours or more have desirable elapsed time until rusting occupies 10 area %, and the corrosion resistance of the bond magnet concerning this invention has 130 more desirable hours or more.

[0083] Next, the manufacturing method of the bond magnet concerning this invention is described.

[0084] It can mix [binder resin and], and the bond magnet concerning this invention can knead the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention, and can obtain it by carrying out fabrication of this kneading object by the method of fabricating common knowledge, such as injection molding, extrusion molding, compression molding, or calender shaping.

[0085] Many things can be chosen by the fabricating method, as said binder resin, when it is injection molding, extrusion molding, and calender shaping, thermoplastics can be used, and thermosetting resin can be used when it is compression molding. As said thermoplastics, resin, such as a nylon (PA) system, a polypropylene (PP) system, an ethylene vinyl acetate (EVA) system, a polyphenylene sulfide (PPS) system, a liquid crystal resin (LCP) system, an elastomer system, and a rubber system, can be used, and resin, such as an epoxy system and a phenol system, can be used as said thermosetting resin.

[0086] The mixed rate of the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning said this invention is 85 · 99 % of the weight, although the optimal mixed rate changes a little with fabricating methods, in injection molding, its 88 · 93 % of the weight is desirable, its 85 · 92 % of the weight is desirable in extrusion molding, its 96 · 98.5 % of the weight is desirable in compression molding, and its 85 · 90 % of the weight is desirable in calender shaping. The bond magnet which there are too few rates of magnet alloy particle powder for less than 85% of the weight of the case, and has sufficient magnetic properties in it is not obtained. The upper limit of the mixed rate of the magnet alloy particle powder in said each fabricating method can be determined based on the demand of the fluidity of a kneading object with the binder resin in which each shaping is possible, or mixture, or the mechanical strength of a moldings.

[0087] In addition, in order to face manufacturing a bond magnet, to make shaping easy or to fully pull out magnetic properties, the additive of common knowledge, such as a plasticizer, lubricant, and a coupling agent, other than binder resin may be used as occasion demands.

[0088] That these additives should just choose a suitable thing according to the purpose, as a plasticizer, the commercial item according to each use resin can be used, and the total quantity can use about 0.01 - 5.0 % of the weight to the binder resin to be used.

[0089] As said lubricant, stearin acid, its derivative, inorganic lubricant, an oil system, etc. can be used, and about 0.01 · 1.0 % of the weight can be used to the whole bond magnet.

[0090] As said coupling agent, use resin and the commercial item according to a filler can be used, and about 0.01 · 3.0 % of the weight can be used to the binder resin to be used.

[0091] said mixing · mixers, such as a Henschel mixer, a V character mixer, and NAUTA, etc. · it can

carry out ·· kneading ·· a 1 shaft kneading machine, a 2 shaft kneading machine, and a mortar ·· a type kneading machine, an extrusion kneading machine, etc. can perform.

[0092] The moldings obtained by carrying out fabrication by said fabricating method can be used as the bond magnet concerning this invention electromagnet magnetization and by carrying out pulse magnetization according to a conventional method.

[0093]

[Embodiment of the Invention] The gestalt of typical operation of this invention is as follows.

[0094] The particle shape of the particle which constitutes rare earth iron boron system magnet alloy particle powder judged by performing appearance observation by the electron microscope. Moreover, calculation of the diameter of an average major axis of particle powder, the diameter of an average minor axis, and average thickness was shown by the result of having measured about 30 particles shown in the electron microscope photograph expanded by 100 times.

[0095] The phase structure of the alloy organization of the particle which constitutes rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder was observed and measured using high-resolution transmission-electron-microscope HR-TEM (JEOL Co., Ltd. make), a nano beam electron diffractograph (JEOL Co., Ltd. make), an energy dispersive X-ray analyzer EDX (JEOL Co., Ltd. make), and X-ray diffractometer (Rigaku Industrial Corp.) (target: iron).

[0096] Magnetic structure of said alloy organization was considered as the check of magnetic structure by identification of a crystal phase by the electron diffraction which used the above mentioned nano beam electron diffractograph. That is, it checked that it was soft magnetism by identifying alphaFe mold crystal and a Fe3B mold crystal. Similarly, it checked that it was hard magnetism by identifying a Nd2Fe14B1 mold tetragonal-system crystal phase.

[0097] Area % of said alloy organization is set to observation by a transmission electron microscope (TEM) etc., and means the area rate within a two-dimensional visual field.

[0098] The value measured by the chemical analysis showed the chemical composition of the particle which constitutes rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0099] The value measured with the sample oscillatory type magnetometer VSM (Riken electronic incorporated company make) showed the magnetic properties of rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder.

[0100] Moreover, beforehand, after the magnetic properties of a bond magnet gave pulse magnetization of about 50 kOe(s), the value measured by the B·H curve tracer (Toei Industry, Inc. make) showed them.

[0101] The Curie point of rare earth iron boron system magnet alloy particle powder was performed by measuring the temperature change of magnetization using the equipment which set to the sample oscillatory type magnetometer VSM (Toei Industry, Inc. make) the case and heating heater as for which the sample bearing bar and device under test by the quartz with a thermocouple are made to a vacuum ambient atmosphere. That is, after magnetizing a device under test in the magnetic field of 10 or more kOes, temperature was raised applying the magnetic field of 1kOe, the value of the magnetization accompanying a temperature rise was recorded, and temperature of the point that the magnetization curve of a hard phase intersected the magnetization curve of a software phase clearly was made into Curie temperature.

[0102] The rust proofing nature of magnet alloy particle powder is JIS. Z It carried out by the salt spray test approach based on 2371. That is, it took out for every fixed time amount, the existence of rusting and

the situation of an increment and expansion of a rusting point were observed with the scanning electron microscope (SEM), and elapsed time until rusting occupies 10 area % showed.

[0103] When rusting is carried out in between or how it sets to an observation side, and a rusting point is increased and expanded estimated the corrosion resistance of a bond magnet under the environment of 80 degrees C and 90% relative humidity. It is the optical microscope visual field of being 50 times many as this, quantitatively, and elapsed time until rusting occupies 10 area % showed.

[0104] After the consistency of a bond magnet cooled enough the cylindrical compression molding bond magnet after hardening in room temperature of about 25 degrees C, it measured the height and cross-section diameter of the cylinder in a three or more place micrometer, respectively, and calculated the cylindrical volume from the average. Next, the value which measured the weight of the compression molding bond magnet concerned with the electronic balance, and **(ed) the weight value (g) with bulking value showed.

[0105] Hereafter, manufacture of rare earth iron boron system magnet alloy particle powder is explained using drawing 1. First, so that it may become the presentation of Nd7Fe83.5Co4Nb1Ga0.5 B4 by the atomic ratio 169.2g (99.9% of purity) (Product made from a Japanese Yttrium) of metal neodium pieces, the piece of metal iron (electrolytic iron, 99.9% of purity) (Showa Denko Make) - 766.6g the piece of metal cobalt (99.9% of purity, Sumitomo Metal Mining Co., Ltd. make) - 38.76g and the piece of a metal niobium - 15.24g and the piece of a metal gallium - 5.73g and the piece of crystal boron - weighing capacity of the 7.13g was carried out, respectively, and AUW was set to about 1kg. These were cast in the RF dissolution in the argon gas reduced pressure ambient atmosphere, and the 1kg rough alloy was obtained.

[0106] Next, 1kg of obtained rough alloys was put into the crucible 1 made from an alumina, melting was carried out at 1350 degrees C by high-frequency heating, and it considered as the alloy molten metal 2. Outflow dropping of this alloy molten metal 2 is carried out from the nozzle 3 made from an alumina, argon gas 4 was sprayed by the pressure of 20kg/cm2, and the drop 6 of an alloy molten metal was made to form from the atomization nozzle 5 to the dropped alloy molten metal 2. The drop 6 of this alloy molten metal was made to collide with the copper cone rotation cooling object 7 of diameter of roll 200mmphi arranged in the flow direction of this drop, 120 cone angles, and rotational frequency 7200rpm, and the quenching congelation particle powder 8 was obtained.

[0107] The obtained quenching congelation particle powder was what has 15 micrometers in 250 micrometers of diameters of an average major axis, 150 micrometers of diameters of an average minor axis, and average thickness, the average 1.7 of the ratio of the diameter of a minor axis, and the diameter of a major axis, and the shape property of the average aspect ratio 17. It has checked that it was the quenching congelation particle powder which consists of a foliaceous particle of a flat tree as it was shown in the scanning electron microscope photograph (x85) of drawing 2, when observation according this powder to a scanning electron microscope was carried out.

[0108] The obtained quenching congelation particle powder showed the peak [broadcloth on the whole] as a result of the X diffraction. As a result of examining this X diffraction result and a high-resolution transmission electron microscope observation result collectively, it has checked that most consisted of an amorphous phase at least, moreover, the result of having measured the configuration element ratio of this alloy particle powder by the chemical analysis ·· Nd7Fe83.5CoNb1Ga0 B4 it is ·· it was checked that it is almost equal to a preparation presentation ratio.

[0109] The above mentioned quenching congelation particle powder was enclosed with the quartz tube under the vacuum of 5x10·2Torr, and heat treatment was performed for 3 minutes at the temperature of 750 degrees C. The clear peak based on two kinds of crystal structures, alphaFe mold (peak expressed with A) and Nd2Fe14B1 mold (peak expressed with B), was detected as a result of the analysis of the X diffraction pattern which shows the rare earth iron boron system alloy particle powder after this heat treatment to drawing 3 obtained as a result of X diffraction measurement. Moreover, from the electron diffraction pattern shown in drawing 4, there is a halo which shows existence of an amorphous phase with the spot which shows crystallinity, and or and remaining were ****(ed) a little also for the amorphous phase.

[0110] About the rare earth-iron-boron system alloy particle powder after the above-mentioned heat treatment, the fine structure was observed using the high-resolution transmission electron microscope, the nano beam electron diffractograph, and the energy dispersive X-ray analyzer. Consequently, the hard magnetism crystal phase in which the soft magnetism crystal phase in which an alloy organization contains alphaFe is 72 area % extent, and contains Nd2Fe 14B1 to all crystal phases was 28 area % extent to all crystal phases, and when total of these crystal phases made the whole two-dimensional visual field 100 area %, it was 91 area % to all alloy organizations. Therefore, the remaining 9 area % was a soft magnetism amorphous phase.

[0111] Moreover, the range of the diameter of crystal grain of the soft magnetism crystal phase containing alphaFe or the solid solution is 20-45nm, the range of the diameter of crystal grain of the hard magnetism crystal phase containing Nd2Fe14B1 mold was 15-40nm, the deposit of each phase was promoted by heat treatment from the mixed phase of the crystal phase before heat-treatment, and an amorphous phase, and it was observed that crystal growth has also happened. Furthermore, each element of Nd and B was condensed by the residual amorphous phase, and it has checked to it that they are 11.3 atoms % and 7.8 atoms %, respectively from the analysis result.

[0112] As a result of measuring the room temperature magnetic properties of the rare earth-iron-boron system alloy particle powder after the above mentioned heat treatment with a sample oscillatory type magnetometer, for coercive force iHc, 4.7kOe(s) and a residual magnetic flux density Br were [11.2kG(s) and maximum magnetic energy (product BH) max] 17.4MGOe(s).

[0113] Moreover, in order to investigate the rust-proofing engine performance of the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder obtained the account of a top, the salt spray test was performed and the rate of surface ratio of the rust which takes out every 12 hours and is occupied on the foliaceous particle front face of a flat tree was observed with the scanning electron microscope. Consequently, elapsed time until rusting occupies 10 area % is 72 hours after, and it has checked that the above mentioned rare earth magnet alloy particle powder was excellent also in rust-proofing nature.

[0114] After melting the 98g of the above-mentioned rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder, and epoxy resin XW-2214(trade name, Japan pel NOx incorporated company make) 2g by the methyl ethyl ketone of optimum dose and often mixing rare earth alloy particle powder, the desiccation evaporation of the methyl ethyl ketone was carried out, and it considered as the mixture for compression molding (it is equivalent to 98 % of the weight of rare earth alloy particle powder, and 2 % of the weight of epoxy resins.).

[0115] The 3.3g of the above-mentioned mixture was put into the press fixture for cylindrical samples with a diameter of 10mm, it pressed by the pressure of about 7 ton/cm2; and the cylindrical green compact

with a diameter [of 10mm] and a die length of about 7mm was obtained.

[0116] The above mentioned green compact was heat-treated at 150 degrees C for 1 hour, the epoxy resin was stiffened, and the compression molding bond magnet of 3 was obtained the consistency of 6.3g/cm.

[0117] After magnetizing about 50 kOe(s) with a pulse magnetization machine to the compression molding bond magnet obtained the account of a top, as a result of measuring the magnet property of a room temperature with a B-H marker, for the residual magnetic flux density Br, 9.1kG(s) and coercive force iHc were [4.6kOe(s) and maximum magnetic energy (product BH) max] 10.5MGOe(s). [0118]

[Function] The most important point makes the drop of an alloy molten metal generate by spraying gas on an outflow alloy molten metal in this invention. The process of grinding of the rare earth iron boron system magnet alloy particle powder which consists of a foliaceous particle of a flat tree by carrying out cooling coagulation using the rotation cooling object of the cone mold arranged in the flow direction of the drop concerned or a disk mold before the drop concerned congeals is not needed. It is the fact that it can obtain very efficient.

[0119] the object for bond magnets concerning this invention -- flat -- leaves -- the particle shape of ** rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder is not a curved surface -- flat -- leaves -- powder covers, since it is a **, it can excel in the leafing effectiveness which is effectiveness, and can be made high restoration at the time of bond magnet manufacture, consequently big saturation magnetic flux density can be obtained.

[0120] Moreover, this invention person considers that why the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder excellent in rust-proofing nature is obtained is because an amorphous phase encloses the perimeter of the soft magnetism crystal phase which mainly bears a magnetic role, or a hard magnetism crystal phase, and exists and the moderate amount moreover stabilizes and exists.

[0121] In addition, when performed by the conventional single roll method as an approach of producing the rare earth magnet alloy particle powder for bond magnets, thickness is irregular, and a thin band with a curved surface needs to be made and it is necessary to grind and use this at the time of bond magnet manufacture. Moreover, for spherical particle powder being obtained and filling up high density, when performed by the atomization method, it is unsuitable, also when this is ground, it becomes the particle of an indeterminate form, and it is not suitable for filling up high density.

[0122] By the way, the manufacturing method (JP,2-34706,A, JP,2-93007,A) which obtains thin film integrated circuit powder, such as glass powder and stainless steel powder, as the pigment for coatings or a filler for plastics is known. In this manufacturing method, by carrying out cooling coagulation of the drop of melt with an umbrella type, a horning die, or a disc-like rotation cooling object, thin film integrated circuit powder is obtained, the leafing phenomenon arranged in parallel with a paint film side happens good, a paint film side is covered without a clearance, and good corrosion resistance and weatherability are given.

[0123]

[Example] Next, the example of a comparison is given in an example list.

Examples 1.27, examples 1.3 of a comparison;

[0124] Rare earth magnet alloy particle powder was obtained like the gestalt of implementation of said invention except having changed various the <manufacture of rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder> example 1 - 27 manufacture alloy presentation, the rotational frequencies of the rotation

cooling object in the production process of alloy particle powder and spraying argon gas pressure, and subsequent heat treatment temperature.

[0125] The rare earth magnet alloy particle powder obtained in the examples 1.27 observed the phase structure of an alloy organization as well as the gestalt of implementation of said invention.

[0126] Consequently, the hard magnetism crystal phase in which the soft magnetism crystal phase containing alphaFe is the range of 18 · 75 area %, and contains Nd2Fe 14B1 to all crystal phases was the range of 90 · 99 area % to all alloy organizations, when it is the range of 25 · 82 area % and total of these crystal phases made the whole two-dimensional visual field 100 area % to all crystal phases. Therefore, the soft magnetism amorphous phase was the range of 1 · 10 area %.

[0127] Moreover, the diameter of crystal grain of the soft magnetism crystal phase which consists of one crystal phase of the mixed phases of alphaFe, the solid solution (alpha solid solution which consists of Fe and M), or the alphaFe and the solid solution It is the range of 5·100nm, and the range of the diameter of crystal grain of the hard magnetism crystal phase which consists of a Nd2Fe14B1 mold tetragonal system crystal phase was 5·100nm, each phase deposited by heat treatment from the amorphous phase before heat treatment, and crystallizing was observed. Furthermore, rare earth and each element of B were condensed by the residual amorphous phase, and it has checked to it that they are the range of 10 · 15 atom % and the range of 7 · 9 atom %, respectively from the analysis result.

[0128] Many properties of the rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder obtained in Table 1 and 2 in the main manufacture conditions at this time are shown in Table 3 and 4.

[0129] The example 1 (single roll type melt quenching method: Japanese Standards Association issue "talk of amorphous metal" (1988) the 36-37 pages) of a comparison

This molten metal was thinly extended on the periphery front face of the rotation cooling object of the roll mold which obtain an alloy molten metal like the gestalt of implementation of said invention, and this alloy molten metal is made to flow out of a nozzle with gas pressure, is arranged in the outflow direction of the alloy molten metal concerned, and rotates to a lengthwise direction, and it made thin band-like one carry out cooling coagulation except having considered as the alloy presentation of an example 20. The obtained cooling congelation was a thin band with a thickness of 30-50 micrometers. The thin object concerned was used as powder 500 micrometers or less using machine grinding and a screen. The particle shape of this powder was GAREKI-like as a result of electron microscope observation. The manufacture conditions and many properties of GAREKI-like powder which were acquired are shown in Tables 2 and 4. [0130] The cooling congelation was obtained like the gestalt of implementation of said invention except having considered as the alloy presentation of example of comparison 2 example 20, and having not sprayed gas on an outflow alloy molten metal in generation of quenching congelation particle powder. This cooling congelation has the uneven thickness of about 100 micrometers thru/or about 1mm, and was presenting the tabular gestalt at which it swerved and turned so that it might lenticulate. The coagulation object concerned was used as powder 500 micrometers or less using machine grinding and a screen. Powdered manufacture conditions and many properties which were acquired are shown in Tables 2 and 4.

[0131] The example 3 (the gas atomizing method: Maruzen issue "a metal handbook" (the 932-933rd pages of 1990 issue)) of a comparison

Except having considered as the alloy presentation of an example 20, obtained the alloy molten metal like the gestalt of implementation of said invention, this alloy molten metal was made to flow out of a nozzle,

and the inside of such a sufficiently large chamber that it does not collide until it makes the drop of an alloy molten metal generate and the drop concerned congeals by spraying gas on the outflow alloy molten metal concerned was flown. During the flight, the rapid solidification of the above mentioned drop was carried out, and it fell. The obtained body was spherical powder which has the diameter of several micrometers thru/or the large particle size distribution of the range of hundreds of micrometers. Powdered manufacture conditions and many properties which were acquired are shown in Tables 2 and 4. [0132]

[Table 1]

		の製造条件			
実施例及		回転往	計本	噴霧アル ゴンガス	加熱処理
び比較例	. 製造合金組成	回転冷却 体の形状	回転数 (rpm)	圧力 (kgf/cm²)	温度(℃)
実施例1	Nd, Fess Cos Ti ₁ B ₄	円錐型	7200	20	700
実施例2	Nd, Feas Cos V ₁ B ₄	円錐型	7200	20	700
実施例3	Nd, Fees Co2.5 Cro.5 B4	円錐型	7200	20	680
実施例4	Nd, Fe _{83.5} Co ₂ Mn _{3.5} B ₄	円錐型	7200	. 20	680
実施例5	Nd, Fe _{81.5} Co, Cu _{0.5} B ₄	円錐型	7200	20	680
実施例6	Nd, Fe _{83.5} Co ₃ Ca _{2.5} B ₄	円錐型	7200	20	700
実施例7	Nd, Fes2 Cos.5 Zro.5 B4	円錐型	7200	20	720
実施例8	Nd, Fe83.5 Co4.5 Nb ₁ B ₄	円錐型	7200	20	720
実施例9	Nd, Fe _{83.5} Co _{3.5} Mo ₂ B ₄	円錐型	7200	20	700
実施例10	Nd, Fe ₅₀ Co _{8,7} Hf _{0,3} B ₄	円錐型	7200	20	740
実施例11	Nd, Fess Cos Tal Ba	円錐型	7200	20	740
実施例12	Nd ₆ Pr ₁ Fe ₈₃ Co ₄ W ₂ B ₄	円錐型	7200	20	720
実施例13	Nd ₅ Pr ₂ Fe ₅₂ Co _{5.5} Si _{1.5} B ₄	円錐型	7200	20	700
実施例14	Nd ₅ Fe ₈₂ Co ₄ Nb ₁ V ₁ B ₆	円錐型	7200	20	760
実施例15	Nd, Fe _{32.5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{6.5} B ₅	円錐型	7200	20	780
実施例16	Nds Fesz Co4 Cr2 Mn1 B5	円錐型	7200	20	720
実施例17	Nd Pr 1 Fem. 5 Co 4 Ti 1 Gao. 5 B4	円錐型	7200	20	700
実施例18	Nd, Pr, Fem Co, Ta, Si, B,	円錐型	7200	20	680
実施例19	Nd, Pr, Fe ₈₂ Co, Nb _{1,6} B _{6,5}	円錐型	7200	20	720
実施例20	Nd, Fe82.5 Co4 Nb1 Cu0.5 B5	円錐型	12000	20	780

[0133] [Table 2]

	希土類磁石合金粒子粉末	の製造条件			
実施例及		回転	部体	噴霧アル	January by will
び比較例	製造合金組成	回転冷却 体の形状	回転数 (rpm)	ゴンガス 圧力 (kgf/cm²)	加熱処理 温度(℃)
実施例21	Nd, Fes2.5 Co4 Nb1 Cu0.5 B5	円錐型	1000	20	780
実施例22	Nda Fe _{80.5} Co ₄ Nb ₁ B _{6.5}	円錐型	7200	5	760
英施例23	Nds Fem Co. Nb. B.	円錐型	7200	10	760
実施例24	Nd ₈ Fe _{19.5} Co ₄ Nb ₂ B _{6.5}	円錐型	7200	20	760
実施例25	Nd ₈ Fe ₇₉ Co ₄ Nb _{2,5} B _{6,5}	円錐型	7200	20	760
実施例26	Nd _{5,5} Fe _{19,5} Co ₄ Nb ₁ B,	円錐型	7200	20	720
実施例27	Nd, Fen Co. Nb, B,	円錐型	7200	20	720
比較例1	Nd, Fe _{82,5} Co ₄ Nb ₁ Cu _{0,6} B ₅	単口-	- ル式液体な	急冷法	780
比較例2	Nd, Fear, Co. Nb, Cu., B5	円錐型	7200	20	780
比較例3	Nd, Fesz, Co, Nb, Cu, B	ガ	スアトマイン	ズ法	780

[0134] [Table 3]

							4十江0	石合金岩	ナ 日本のH	14tt						
					中均數	平均72		会会	成中の精	1 (18 (c+d=1	DOM)		- 415	1411		助辞性 (発語が10
実施例及び比較的	180子形状	平均長 翻径 µm	平均短 動性 pm	平均厚 さ ルニ	中川県 社長 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本 日本	・・・ いか比 長頭径 ノ厚さ	音彙環成	に 取取性を 品称。	相(s+b=1 を改せに 品用の		軟織性 非島貴 和此	残智雄 東密度 Br	保贷力 1 H c kDs	最大24 1'-在 (EH)	107-28 TE (TD)	面のを占 あるまでの を込内
					-			西黎	55 (3)	面毯	距数	EC	200	(0000-)	(0)	图) (時間)
声施 例1	停停水の無状	250	150	15	1.7	17	Silvant no	12	28	91	9	10.8	4,0	15,2	428	60
灵施师2	毎年木の実状	245	165		1.5	. 18	ಷಚಿಸಿದ್ದರಿಗಳ		26	94	6		1.8	15.5	121	60
2100	医手木の無状	255	166	. 16	1.5	17	BEHALDE	15	26	06	6	0.0	6.0	15.0	342	84
男篮(74	ダ平木の無状	265	115		1.8	16	即沿地域と同じ	12	28	94	6	10.8	4.1	17.1	361	72
多施%	信平木の祭状	256	155	17	1.6	16	製造組成と同じ	74	26	94	6	10, 5	4,1	15.9	131	72
灵度的	写乎木の茶状	245	165	13	1.5	19	製造組成と同じ	15	25	92	. 8	10.2	4.2	15.4	360	60
典地的在	毎平木の実状	255	185	19	1.4	14	BRINKRETTO	70	30	90	LO	9.8	1.1	15.5	296	50
实施师	毎千木の祭状	296	186	22	1.6	13	製造機成と同じ	12	28	90	10	11.1	4.7	18.4	420	60
英域 伊2	低平木の選択	335	235	35	1.4	_ 10	型透光成色面色	75	25	92		10.7	4.1	16,7	386	60
宾施的10	長年木の銀状	285	185	18	1.5	16	製造組成と同じ		30	90	10	10.2	-1.2	15.3	118	72
美統領1 1	属手木の選択	295	185	25	1.6	12	製造雑成と何じ	74	26	91	9	9, 9	4.5	15.5	378	-60
表施例2	個子木の末状	346	255	33	1.1	10	製造組成と同じ	70	30	91	9	10-8	1.1	15,3	397	60
灵族的13	毎年木の黄伏	245	185	13	1.6	19	<u>ಪ್ರಕಟ್ಟಡಿಸಿಗಳು</u>	71	29	94	6	11.3	4.7	17.1	432	60
实施你4	興呼水の奈状	295	206	24	1.4	12	製造組成と同じ	70	30	90	10	11.3	6,1	18,1	438	60
高減的16	毎年末の無状	285	185	22	1.5	13	到透過成之間と	74	26	91	9	11.5	1.8	_17.1	. 123	60
英雄併16	低乎木の策状	245	155	14	1.6	18	急端輪成と同じ	15	25		9	10.3	1.8	15.7	379	72
英捷伊17	傷平木の悪状	255	155	14	1.7	19	最適格成と何じ		27	98	6	10.5	1.8	17.0		·
異度例18	偏平木の東伏	285					製造物成と同じ		1			10.4	1.0			
夫施(約:9	偏千木の菜状	316	586	28	1,6		製造権成と同じ	12	28	90	10	10.2	5.7	18.3	433	
男域俳賞0	低平木の気状	120	05		1.3	20	単独相応と同じ	14	26	90	10	10.3	3.0	13.5	430	84

[0135] [Table 4]

							毒土	類磁岩合金	粒子粉末の	路特性						
*								**	組成中の起	Mill(c+d=)	00%)			特性		防链性
英雄併及 び比較例	粒子形状	平均長 動花	平均短 触径	平均原 さ	平均16比 長16登	要が近/ 算さ	含金組成	第四円(a+b=1005)		(DS)	数磁性非	接包罩	保留力	最大時	\$19~ A	(発益が10 両でがそさ
		μm	μm	μm	班輪班			数据性能 品作。 高微	硬症性結 品相 両例	便報性給 品相c 両様が	品質相組	東田原	iHc k0e	(322Os) (233) max 4,-62	Tc)	めるまでの 経過時 間)(時間)
爽施修21	盛平水の美 状	490	410	. 95	1.2	5.0	制造組成 と同じ	73	27	, 93		_11.1	4, 1	15. 9	427	60
実施例22	四年末の選 状	470	425		1.1	5, 1	製造組成 と同じ	69	31	94		10.3	4.1	13.6	420	60
英施伊23	値平木の選 状	429	354	80	1.2	5.4	製造組成と同じ	54	46	92	8	10.2	6, 1	. 17.4	401	60
典制仍24	偏平水の薬 状	333	210	36	1.6	9.5	製造担成と何じ	43	67	93		9.9	0. 1	17, 1	382	60
實施第26	偏平木の類 状	217	246	61	1.1	5.4	製造担成 と倒じ	39	61		7	D. B	6. 0	19. 2	392	60
異論例26	毎半木の栗 状	290	150	34	1.9	8.5	製造組成と同じ	21	79	96		10.2	6.4	19. 5	-360	60
実施例27	留平木の妻 状	325	158	49	2, 1	8.6	製造機成 と何じ	18	82	99		9. 8	6.6	18, 1	306	60
会有(%)	3*14状粉末				_	_	製造組成 と何じ	72	28	91	9	10.7	4.1	16. 8	420	50
	そりまがっ た板状				_	_	製造機成 と同じ	73	27	92	8	10.0	3, 4	9.6	408	48
	pt.				_		製造組成と同じ	73	27	92		9. 2		10.3		48

[0136] <Bond magnet with which rare earth-iron boron system magnet alloy particle powder is mixed>
The bond magnet was obtained like the gestalt of implementation of said invention except having changed various classes of examples 28-54 and magnet alloy particle powder used example of comparison 4-6.

[0137] The main manufacture conditions and many properties at this time are shown in Table 5. [0138]

[Table 5]

	i i	ポンド電石の特性									
英統例及び 共創的	使用合金粒子物 来の延頭	保証力 i H a (Iot)	州智程京田 原 Br (kfauss)	最大時終'~ 荀(BE) max (BECCe)	是 章 (z/cr)	財政性 発調が10日 部Xを占め るまでのを 当時間 (時間)					
实施例28	実施例1	3, 6	8.1	9.7	6.3	14					
奥莫尔29	実放的2	4. 7	8. 2	10.6	6.2	16					
実施(1/20	东欧州3	1.8	7.9	10.1	6.3	15					
夹皮(作))	表施例1	4. 0	8.6	10.5	5, 1	16					
克族例32	实施的	3.0	7.0	10.8	6.2	. 17					
实施例33	实放例5	4. 1	8.1	9,5	6, 2	19					
共総例4	夫放例7	1.1	7.2	9.0	0.4						
實施例35	寫註例B	4.5	9.3	11.3	6.3	:					
英矩伊时	美成例9	1.9	7.9	10,7	6.2						
夹龙孙7	夹烷例10	1. 2	7. 1	9,7	6, 3						
實施例38	来放例11	1.3	1.2	9.9	6.3						
弄地(例)9	兵統例12	4.3	1.9	10,4	6.4	14					
声域(外()	主放例13	4, 6	3.2	11.0	6.2	1.					
異態(例1	実施例14	4. 9	9.0	11.4	6.5	11					
其施例12	英烷例16	5.1	3, 6	11.0	6, 4	10					
爽施(州3	寒放例16		8.0	10.7	6,2	1					
英牌例4	实院例17	4, 5	8, 1	10,1	6.2	1:					
男旗例5	支統例11	4, 8	8,0	11,0	6, 3	1					
夹座拼后	実放例19	<u> 6.2</u>	7.6	11.8	6,3	1					
異態例17	突施研20	3.7	7.7	9.8	6.1	2					
爽達伊州8	黑炫例21	4.6		10.8	6.3						
夹施例19	英院例27	4. 5	7.8	9.5	6.3	1:					
実施係50	天成例23	6.7	7.4	11.2	6.3	12					
英雄伊51	英族例24	6, 0	7.4	11.3	6.3	1					
共施伊约2	突然例28	8, 1	r, 2	12.4	6.3	1.					
英度例53	高度926	6.4	7.9	12.5	6.2	1;					
灵度(954	英族的27	6. 1	1.1	11.6	6.3	1:					
社教授	比較例1	4, 5	7.1	9.3	6.0						
比较95	比較別2	3.1	6.6	5.6	5.7	:					
共教研究	比較的	4, 3	5. 9	7,9	5.9	٠					

[0139] For 7.2 · 9.3kGauss and maximum energy product (BH) max, 9.5 · 12.5MGOe and a consistency were [coercive force iHc / 3.7 · 6.4kOe and a residual magnetic flux density Br / 6.2 · 6.5 g/cm3 and the corrosion resistance of the bond magnet obtained in the example of this invention] 132 · 212 hours.

[0140]

Effect of the Invention Since the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention has the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently its maximum magnetic energy (product BH) max is large, and it is excellent in rust-proofing nature and excellent in the leafing effectiveness, it is suitable as a charge of high performance bond magnet material.

[0141] And under 10 atom %, since it is few, the amount of rare earth can obtain the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree for bond magnets concerning this invention in favor of economical and an industrial target.

[0142] Furthermore, the bond magnet obtained using the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree concerning this invention It originates in the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree to be used having many above mentioned properties. Since the consistency is large, while it has the big residual magnetic flux density Br and the high coercive force iHc, consequently maximum magnetic energy (product BH) max is large, and excellent in corrosion resistance, and being able to miniaturize, it is usable for various applications. Therefore, it can be said that the industrial availability of this invention is very large.

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.*** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

Drawing 1 It is the schematic diagram of the equipment which manufactures the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree in the gestalt of implementation of invention.

[Drawing 2] It is the scanning electron microscope photograph (x85) in which the particle shape of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree obtained with the gestalt of implementation of invention was shown.

[Drawing 3] It is the X diffraction pattern which showed the crystal structure of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree obtained with the gestalt of implementation of invention.

Drawing 4 It is the electron diffraction pattern in which the crystal structure of the particle which constitutes the foliaceous rare earth-iron-boron system magnet alloy particle powder of the flat tree obtained with the gestalt of implementation of invention was shown.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-288807

(43)公開日 平成11年(1999)10月19日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	•	FΙ				
H01F 1/06			H01F	1/06		Α	
B 2 2 F 1/00			B 2 2 F	1/00		Y	
9/08				9/08		M	
9/10	•			9/10			
C 2 2 C 38/00	303		C22C 3	38/00		303D	
		審查請求	未請求請求	質の数 5	OL	(全 14 頁)	最終頁に続く
(21)出願番号	特願平11-28997		(71)出願人	000166	443		
•				戸田工	業株式	会社	
(22)出顧日	平成11年(1999) 2月5日			広島県	広島市	西区機川新町	7番1号
			(72)発明者	浜野-	正昭		
(31)優先権主張番号	特願平10-41074			広島県	大竹市	明治新開 1 番	4戸田工業株式
(32)優先日	平10(1998) 2月6日			会社大	竹工場	内	
(33)優先權主張国	日本 (JP)		(72)発明者	山崎	実		•
				広島県	大竹市	明治新開 1 番	4 戸田工業株式
	•			会社大	竹工場	内	
			(72)発明者	水口	博崇		
				広島県	大竹市	明治新開 1 番	4戸田工業株式
				会社大	竹工場	内	
					•	•	

(54) 【発明の名称】 ポンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ポロン系磁石合金粒子粉末及びその製造法並びにポンド 磁石

(57) 【要約】

【課題】 大きな残留磁束密度 Brと高い保磁力 i Hcを有し、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、防錆性に優れ、リーフィング効果に優れたボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末及びその製造法並びに該希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を用いたボンド磁石を提供する。

【解決手段】 平均長軸径が60~500μm、平均短軸径が50~460μm、平均厚さが3~100μm、平均軸比が1.1~10、平均アスペクト比が3~100である偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末は、希土類一鉄ーボロン系の粗合金を、加熱溶解して合金溶湯とした後、ノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴を円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に衝突させることによって冷却凝固させて急冷凝固物粒子粉末とし、次いで、600~850℃の温度範囲で加熱処理することにより得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 粒子形状が偏平木の葉状の粒子からなる 希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末であって、平均 長軸径が60~500μm、平均短軸径が50~460 μm、平均厚さが3~100μm、平均軸比(長軸径/ 短軸径)が1.1~10、平均アスペクト比(長軸径/ 厚さ)が3~100であるボンド磁石用偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末。

【請求項2】 希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子の合 金組成が式 R_xF e $_{100-x-y-z-w}C$ o $_yM_zB_w$ (ただし、 Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ばれる希 土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、Cr、 Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, Cu, G a、Ag及びSiから選ばれる元素の一種又は二種以 上、x、y、z及びwは、それぞれ、 $5 \le x \le 10$ 、 1. $0 \le y \le 9$. 0, 0. $1 \le z \le 5$, $2 \le w \le 7$, 9 \leq (x+w)、5<(y+z)) で表わされる組成を有 し、且つ、αFe、固溶体 (αFeとMとからなる固溶 体) 又はαFeと固溶体との混合相のいずれかの結晶相 からなる軟磁性結晶相とNd2Fe14B1型正方晶系結晶 相からなる硬磁性結晶相とのそれぞれが、軟磁性非晶質 相中に析出している合金組織を有しており、しかも、前 記軟磁性非晶質相が全合金組織に対し10面積%以下で あって、前記軟磁性結晶相が前記軟磁性結晶相と前記硬 磁性結晶相とを合わせた全結晶組織に対して10面積% 以上であり、残部が前記硬磁性結晶相である請求項1記 載のボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁 石合金粒子粉末。

【請求項3】 保磁力 i H c が3.5 k O e 以上、残留 磁束密度 B r が9.5 k G以上及び最大磁気エネルギー 積 (BH) max が13 M G O e 以上である請求項1又は 2 記載のボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン 系磁石合金粒子粉末。

【請求項4】 式R_xFe_{100-x-v-z-w}Co_vM_zB_w(た だし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ば れる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、 Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Mn, C u、Ga、Ag及びSiから選ばれる元素の一種又は二 種以上、x、y、z及びwは、それぞれ $5 \le x \le 10$ 、 1. $0 \le y \le 9$. 0, 0. $1 \le z \le 5$, $2 \le w \le 7$, 9≤ (x+w)、5<(y+z))で表わされる組成割合</p> となる様に製造した粗合金を、加熱溶解して合金溶湯と した後、当該合金溶湯をノズルから流出させ、当該流出 合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を 生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴の流動方 向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に 該液滴を衝突させることによって冷却凝固させて偏平木 の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末とし、次い で、当該急冷凝固物粒子粉末を600~850℃の温度 範囲で加熱処理することを特徴とする請求項1乃至3の 2

いずれかに記載のボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄 ーボロン系磁石合金粒子粉末の製造法。

【請求項5】 請求項1乃至3のいずれかに記載のボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂中に分散してなるボンド磁石であって、当該偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末が85~99重量%の割合で混合されていることを特徴とするボンド磁石。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、大きな残留磁束密度Br、殊に、9.5kG以上と、高い保磁力iHc、殊に、3.5kOe以上とを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れたボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末及びその製造法並びに該希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を用いたボンド磁石に関するものである。

[0002]

い。

【従来の技術】ボンド磁石は、その形状自在性や高寸法精度などの利点があるため、従来から電気製品や自動車部品等の各種用途に広く使用されているが、近年、電気製品や自動車部品の小型・軽量化に伴って、これに使用されるボンド磁石自体の小型化が強く要求されている。【0003】ボンド磁石の小型化のためには、磁石の高性能化、即ち、大きな残留磁束密度Brと高い保磁力iHcとを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きいことが強く要求されている。

【0004】周知の通り、バリウムフェライトやストロンチウムフェライト等のマグネトプランバイト型フェライトを用いたボンド磁石(以下、「フェライトボンド磁石」という。)は、フェライト粉末が酸化物であるため、耐食性に優れており、また、バリウム、ストロンチウム等の酸化物や鉄酸化物等の安価な原料を用いて製造されるので、経済的であり、広く使用されている。

【0005】しかし、このフェライトボンド磁石の磁気特性は、通常、残留磁束密度 Brが2~3k G程度、保磁力 i Hcが2~3kOe程度、最大磁気エネルギー積(BH) $_{max}$ が1.6~2.3MGOe程度であって、使用される機器の小型・軽量化には十分なものではな

【0006】磁石の高性能化と低価格化への要求はとどまるところがなく、1982年に希土類元素の内でも比較的低価格であるNdを用いたNd一鉄ーボロン系磁石合金が、住友特殊金属(株)と米国ゼネラルモーターズによってほぼ同時に開発されて以来、広く各種用途に応用されており、ボンド磁石への展開も行われている。さらにその磁気特性の向上を求めて希土類一鉄ーボロン系交換スプリング磁石合金の開発がさかんであり、一部は既に実用化されている。

.3

【0007】前記交換スプリング磁石は、鉄 (αFe) 若しくは鉄化合物とNd2Fe14B1型正方晶化合物との交換相互作用により、磁気的なスプリング現象を示すもので、その特徴は、低い希土類含有量と大きな残留磁束 密度Brを有することであり、コストパフォーマンスに優れた磁石となる可能性が高いものとして期待されている

【0008】即ち、Nd等の希土類量が10原子%未満の希土類一鉄ーボロン系交換スプリング磁石合金は、例えば、ゼネラルモーターズが開発した市販の"MQP"(商品名)のようにNd等の希土類量が化学量論組成に近い10~15原子%の希土類一鉄ーボロン系磁石合金に比べ、磁気特性上のポテンシャルが高く、また、高価な希土類の含有量を低減できるため経済的であるという特徴を有する。

【0009】前記Nd等の希土類量が10原子%未満の希土類一鉄一ボロン系交換スプリング磁石合金には、軟磁性相としてαFeを含む系とFe3BやFe2Bを含む系とがある。前者は、一般に残留磁束密度Brが10~13kGと大きいが保磁力iHcは高々3.5kOe未20満と低いものであり、後者は、一般に保磁力iHcが3.5~7.7kOeと比較的高いが、残留磁束密度Brが10kG程度以下であるため、"MQP"と比べると残留磁束密度Brは大きいがαFe主体系に比べて低いものである。

【0010】ところで、希土類一鉄一ボロン系磁石合金を用いたボンド磁石の主な用途である小型モーター等の分野においては、モーターの小型化と使用磁石の磁気的安定性の観点から、残留磁束密度Brと保磁力iHcのバランスがとれた磁気特性であること、即ち、残留磁束密度Brが9.5kG以上、保磁力iHcが3.5kOe以上であることが強く要求されている。

【0011】また、Nd等の希土類を含む磁石合金は、空気中で酸化されて次第に安定な酸化物を生成しやすく、防錆性に劣るという欠点がある。そのため、Nd等の希土類を含む磁石合金を用いて製造されたボンド磁石は、耐食性が劣るので、一般には樹脂系のディッピング、スプレーコーティング、電着塗装あるいは金属メッキなどの防錆コーティングが施されるのが普通である。

【0012】従って、Nd等の希土類を含む磁石合金の 防錆性が向上すれば、上記のような用途においてもボン ド磁石表面の防錆コーティングを簡略化又は省力化でき ることが期待でき、用途によっては、防錆コーティング を省略できる可能性もあるため、希土類一鉄ーボロン系 磁石合金の防錆性の向上が強く要求されている。

【0013】また、ボンド磁石は、通常、磁石粉末を結合剤樹脂中に練り込んで成形することにより製造されるが、磁石粉末の形状が薄片状であれば容易に機械配向して結合剤樹脂中への充填密度を向上させることができることが知られている。しかし、薄片状粒子であっても湾 50

曲した面を有する場合には十分に充填密度を向上させる ことは困難となる。即ち、用途は異なるものの、特開平 2-34706号公報の「・・・塗料用の粉末として は、一般に薄片状のものが好ましいとされている。すな わち、粉末を塗料用の樹脂に混合して刷毛塗り、スプレ 一等で塗布したとき、樹脂の硬化時に生じる表面張力に よって粉末が塗面と平行に積層し(これをリーフィング 現象という)、粉末による連続した被膜が形成され、素 材を外気から遮断してより良好な耐食性耐候性を付与す るからである。・・・」なる記載の通り、ボンド磁石の 製造においても、粒子形状が曲面でない偏平木の葉状の 粒子からなる磁石合金粒子粉末を用いることによりリー フィング効果によって、ボンド磁石中における粉末の充 填密度を容易に上げることができるためボンド磁石の飽 和磁束密度Brが向上し、ひいては最大磁気エネルギー 積(BH) maxを高めることが可能となる。そこで、リ ーフィング効果に優れた粒子形状が曲面でない偏平木の 葉状の粒子からなる希土類磁石合金粒子粉末が望まれて いる。

【0014】即ち、大きな残留磁束密度Brと高い保磁力iHcとを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れた偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末が強く要求されているのである。

【0015】なお、Feを主成分(ただし、91原子% 未満である。)とし、1種又は2種以上の希土類元素 (R)とホウ素(B)を含有する急冷永久磁石材料において、10面積%以下の軟磁性非晶質相を含み、残部が R-Fe-B系硬質磁性化合物を含む結晶質相からなる 永久磁石材料は公知である(特開平8-162312号 公報)。

[0016]

【発明が解決しようとする課題】大きな残留磁束密度Brと高い保磁力iHcとを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れた希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末は、現在、最も要求されているところであるが、このような特性を有する希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末は未だ得られていない。

【0017】即ち、前出特開平8-162312号公報記載の希土類-鉄ーボロン系磁石合金は、同公報の「表5」に残留磁東密度Brが0.62~0.97T(6.2~9.7kGに相当する。)程度、保磁力iHcが0.16~0.21MA/m(1.25~2.6kOeに相当する。)程度、最大磁気エネルギー積(BH)maxが19.7~72.0kJ/m³(2.5~9.0MGOeに相当する。)程度と記載されている通り、保磁力iHcが高々3kOe程度、残留磁東密度Brが高々10kG程度と低いものであった。

【0018】前出特開平8-162312号公報の実施

例2~4に記載の希土類-鉄-ボロン系磁石合金は、急 冷薄帯を粉砕した後、真空中で押出加工して得られたバ ルク体であり、本発明に係る偏平木の葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末とは形態が相違する。

【0019】そこで、本発明は、大きな残留磁束密度Brと高い保磁力iHcとを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、防錆性に優れ、且つ、リーフィング効果に優れたボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を得ることを技術的課題とする。

[0020]

【課題を解決するための手段】前記技術的課題は、次の 通りの本発明によって達成できる。

【0021】即ち、本発明は、粒子形状が偏平木の葉状の粒子からなる希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末であって、平均長軸径が60~500μm、平均短軸径が50~460μm、平均厚さが3~100μm、平均軸比(長軸径/短軸径)が1.1~10、平均アスペクト比(長軸径/厚さ)が3~100であるボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末である。

【0022】また、本発明は、希土類一鉄ーボロン系磁 石合金粒子の合金組成が式RxFe100-x-v-z-wCovMz Bw(ただし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCe から選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、T i, V, Cr, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, M n、Cu、Ga、Ag及びSiから選ばれる元素の一種 又は二種以上、x、y、z及びwは、それぞれ、5≤x ≤ 10 , 1. $0 \leq y \leq 9$. 0, 0. $1 \leq z \leq 5$, $2 \leq w$ ≤ 7 、9 \leq (x+w)、5<(y+z)) で表わされる 組成を有し、且つ、αFe、固溶体(αFeとMとから なる固溶体) 又はαFeと固溶体の混合相のいずれかの 結晶相からなる軟磁性結晶相とNd2Fe14B1型正方晶 系結晶相からなる硬磁性結晶相とのそれぞれが、軟磁性 非晶質相中に析出している合金組織を有しており、しか も、前記軟磁性非晶質相が全合金組織に対し10面積% 以下であって、前記軟磁性結晶相が前記軟磁性結晶相と 前記硬磁性結晶相とを合わせた全結晶組織に対し10面 積%以上であって、残部が前記硬磁性結晶相である前記 ボンド磁石用偏平木の葉状希土類-鉄ーボロン系磁石合 金粒子粉末である。

【0023】また、本発明は、保磁力iHcが3.5kOe以上、残留磁束密度Brが9.5kG以上及び最大磁気エネルギー積(BH)maxが13MGOe以上である前記いずれかのボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末である。

【0024】また、本発明は、式R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w(ただし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、

6

W、Mn、Cu、Ga、Ag及びSiから選ばれる元素の一種又は二種以上、x、y、z及びwは、それぞれ、5≦x≦10、1.0≦y≦9.0、0.1≦z≦5、2≦w≦7、9≦(x+w)、5<(y+z))で表わされる組成割合となる様に製造した粗合金を、加熱溶解して合金容湯とした後、当該合金容湯をノズルから流出させ、当該流出合金容湯にガスを噴霧することにより合金容湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴の流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に該液滴を衝突させることによって冷却凝固させて偏平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末とし、次いで、当該急冷凝固物粒子粉末を600~850℃の温度範囲で加熱処理することを特徴とする前記いずれかのボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の製造法である。

【0025】また、本発明は、前記いずれかのボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂中に分散してなるボンド磁石であって、当該偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末が85~99重量%の割合で混合配合されていることを特徴とするボンド磁石である。

【0026】本発明の構成をより詳しく説明すれば、次の通りである。

【0027】まず、本発明に係るボンド磁石用偏平木の 葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末について述 べる

【0028】本発明に係るボンド磁石用希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の粒子形状は偏平木の葉状であり、当該粉末の平均長軸径は $60\sim50$ 0 μ m、好ましくは $80\sim500$ μ m、好ましくは $100\sim500$ μ mであって、平均短軸径は $50\sim46$ 0 μ m、好ましくは $70\sim460$ μ m、より好ましくは $85\sim460$ μ mであって、平均厚さは $3\sim100$ μ m、好ましくは $5\sim95$ μ mであって、平均軸比(長軸径/短軸径)は $1.1\sim10$ 、好ましくは $1.1\sim5$ 、より好ましくは $1.1\sim3$ であって、平均アスペクト比(長軸径/厚さ)は $3\sim100$ 、好ましくは $3\sim50$ 、より好ましくは $3\sim30$ である。

【0029】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 ・ 土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の 合金組成について述べる。

【0030】前記合金組成は、式 $R_xFe_{100-x-y-z-w}Co_yM_zB_w$ で表される。式中、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及び Ce_n ら選ばれる希土類元素の一種又は二種以上である。残留磁束密度Brや保磁力iHcを考慮すれば、Nd、Pr、Nd-Pr合金及びこれらに他の希土類元素が混合されたものが好ましく、Nd、Prが最も好ましい。ただし、上記以外の希土類元素が全希土類量に対して10原子%以下含まれていても差支えな

11

【0031】R量は、 $5 \le x \le 10$ であり、好ましくは $5.5 \le x \le 9$ 、より好ましくは $6 \le x \le 8$ である。 xが 5未満の場合には、N d $_2$ F e $_1$ 4 B $_1$ 型正方晶系結晶相 からなる硬磁性結晶相の析出量が不十分で、保磁力が 3.5 k O e 以上にならず、10 を越える場合には、 α F e、固溶体(α F e と M とからなる固溶体)又は α F e と 固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性 結晶相の析出量が不十分で、B r ≥ 10 k G以上の高残 留磁束密度が得られない。

【0032】Fe量は、100-x-y-z-wで表され、全原子に対して $69\sim86\%$ の範囲である。69%未満の場合には、残留磁束密度Brが減少し、本発明の目的とする9.5kG以上が得られない。86%を越える場合には、相対的にR量やCo量が減少することになり、本発明の目的とする保磁力 i Hc が 3.5k Oe 以上が得られない。

【0033】Coは、M元素とともに保磁力の向上、磁化の増大、防錆性の向上及びキュリー点の上昇による熱安定性の向上をもたらす必須の元素である。

【0034】 $Co量は、1.0 \le y \le 9.0$ であり、好 20 ましくは $1.5 \le y \le 9.0$ 、より好ましくは $2.0 \le y \le 9.0$ である。1.0未満の場合には、保磁力やキュリー点の上昇が十分でなく熱安定性に劣る。9.0を越える場合には、鉄成分の減少による残留磁束密度Brの低下が顕著となり、10kG以上が得られない。

【0035】Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、M o、Hf、Ta、W、Mn、Cu、Ga 、AgQVSi i から選ばれる一種以上の元素であり、 $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型 正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の結晶磁気異方性 を高め、また、析出相の微細化効果により高い保磁力を 得ることができる。また、 αFe 、固溶体(αFe とM とからなる固溶体)又は αFe と固溶体の混合相のいず れかの結晶相からなる軟磁性結晶相を安定化してボンド 磁石の耐食性や熱安定性を改善をすることができる。

【0036】前記M元素の内、Mn、Cu、Ga、Ag 及びSiは、他のM元素とともに添加すると、その相乗 効果によってより高い保磁力を得ることができる。

【0037】M元素の量は $0.1 \le z \le 5$ であり、好ましくは $0.2 \le z \le 4$ 、より好ましくは $0.3 \le z \le 3.5$ である。1 未満の場合には、保磁力の向上効果に乏しく、ひいては熱安定性に劣る。5 を越える場合には、鉄系成分(Fe、Co)の減少によるBrの減少を招く。

【0038】前記M元素のうち、Ti、Zr、Nb、Hf、Ta、Si及びGaは、保磁力の向上に寄与するとともに、非晶質相を形成しやすく、合金組織中に非晶質相が安定に残存し、防錆性が発揮された磁石合金粒子粉末を得ることができ、これを用いることにより耐食性に優れたボンド磁石が得られる。

【0039】Bは、Nd2Fe14B1型正方晶系結晶相か

8

らなる硬磁性結晶相を構成するために必須の元素であり、その量は、 $2 \le w \le 7$ であり、好ましくは $2.5 \le w \le 6.5$ 、より好ましくは $3 \le w \le 6.5$ である。2未満の場合には、 $N d_2 F e_{14} B_1$ 型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の析出量が不充分となり、 $i H c \ge 3.5 k O e$ とならない。7を越える場合には、Bが過剰となり残留磁束密度Brの減少を招く。

【0040】R量及びB量の和は、 $9 \le (x+w)$ であり、好ましくは10以上である。9未満の場合には、急冷による十分な軟磁性非晶質相が形成されず、熱処理によっても $iHc \ge 3$. 5kOeを実現できない。大きな残留磁束密度Brを保持することを考慮すれば、その上限値は18が好ましく、より好ましくは17である。

【0041】Co量及びM量の和は、<math>5<(y+2)であり、好ましくは5.1以上、より好ましくは5.5以上である。5以下の場合は、保磁力や熱安定性を向上させる効果が得られにくくなる。大きな残留磁束密度Brを保持することを考慮すれば、その上限値は11が好ましく、より好ましくは10である。

【0042】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の 合金組織について述べる。

【0043】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子 は、全合金組織に対し10面積%以下、好ましくは9面 積%以下の軟磁性非晶質相を有している。軟磁性非晶質 相の下限値は1面積%である。

【0044】軟磁性非晶質相が全合金組織の二次元的観察視野において10面積%を越える場合には、軟磁性結晶相や硬磁性結晶相との距離が大きくなるので、両相の間に働く磁気的交換相互作用による磁気的結合が弱められる結果、むしろ磁石特性を向上させる効果が得られない。軟磁性非晶質相の前記防錆効果を考慮すれば、その下限値は好ましくは1面積%である。

【0045】軟磁性非晶質相は、8~20原子%、好ましくは9~15原子%の希土類と70~90原子%、好ましくは70~85原子%の鉄又は鉄と上記元素Mとの合金と22原子%以下、好ましくは5~18原子%のボロンとからなる。この軟磁性非晶質相は、軟磁性を有しているとともに、結晶化のための加熱処理工程において、結晶粒の粗大成長を抑制し、微細な結晶相を形成させることができるので、合金全体の硬磁性を向上させることができる。

【0046】また、軟磁性結晶相と硬磁性結晶相とのそれぞれが軟磁性非晶質相中に島状に分散析出しているため、この軟磁性非晶質相は、主として磁気的な役割を担う軟磁性結晶相や硬磁性結晶相の周囲を取り囲んでいるので酸化の進行を抑制するから、錆の進行を防げるバリヤーとしての効果を奏し、磁石合金粒子の防錆性を向上させることができる。

【0047】軟磁性非晶質相は、非晶質相が通常有する機械的強度、化学的耐性及び防錆性等の効果も十分期待できる。

【0048】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末における軟磁性結 晶相は、αFe、固溶体(αFeとMとからなる固溶 体)又はαFeと固溶体の混合相のいずれかの結晶相か らなり、軟磁性結晶相と硬磁性結晶相とを合わせた全結 晶組織に対し10面積%以上含んでいる。軟磁性結晶相 は、残留磁束密度Brの向上に寄与している。10面積 %未満の場合には、本発明の目的とする大きな残留磁束 密度Brを有する磁石合金粒子粉末を得ることができな い。保磁力iHcを向上させる役割を担う硬磁性結晶相 の比率を考慮すれば、その上限値は90面積%が好まし い。

【0049】軟磁性結晶相の平均結晶粒径は、5~100nmが好ましく、より好ましくは10~50nmの範囲である。

【0050】軟磁性結晶相には、αFe、固溶体 (αFeとMとからなる固溶体)又はαFeと固溶体の混合相 20のいずれかの結晶相以外にFe3B、Fe2B、これらとMとの固溶体、更に、Fe2ZrなどのFeとMとの金属間化合物が状態図的にあるいは製造工程上不可避的に含まれることがあるが、本発明の目的とする諸特性を有する磁石合金粒子粉末を得る上では特に問題とはならない。

【0051】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子に おける硬磁性結晶相は、Nd2Fe14B1型正方晶系結晶 相からなり、全結晶組織に対し90面積%未満である。

【0052】90面積%を越える場合は、軟磁性結晶相が少なくなり、大きな残留磁束密度Brが得られない。本発明の目的とする保磁力 iHc値を考慮すれば、その下限値は10面積%が好ましい。より好ましくは $20\sim85$ 面積%である。

【0053】前記硬磁性結晶相は、保磁力iHcを発現させる効果を奏する。また、M元素が一部この硬磁性結晶相中に入り、異方性定数を向上させ、結果として保磁力を向上させることがある。

【0054】硬磁性結晶相には、 $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型化合物の他に状態図的に不可避に析出する微小の化合物相を含んでいてもよい。

【0055】硬磁性結晶相の平均結晶粒径は、5~100nm以下が好ましく、より好ましくは10~50nmの範囲である。

【0056】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末は、残留磁束密度 Brが9.5kG以上、好ましくは10.0kG以上で あり、保磁力iHcが3.5kOe以上、好ましくは 4.0kOe以上を有し、最大磁気エネルギー積(B 10

H) maxが13MGOe以上、好ましくは15MGOe以上を有する。その上限値は、残留磁束密度Brが13kG、保磁力iHcが8kOe、最大磁気エネルギー積(BH) maxが25MGOeである。なお、上記の粉末の磁気特性の内、Brは圧粉体のBrから密度補正して算出したものであり、(BH) maxの計算もこのBrを用いて行った。

【0057】また、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の防錆性は、JIS Z 2371に基づく塩水噴霧試験法により、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間が少なくとも50時間以上、好ましくは55時間以上、より好ましくは60時間以上であって、従来のNd-Fe-B系合金粒子粉末に比べて後出実施例に示すように明確に優れている。

【0058】次に、本発明に係るボンド磁石用偏平木の 葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の製造法に ついて述べる。

【0059】まず、式 R_x Fe $_{100-x-y-z-w}$ Co $_y$ M $_z$ B $_w$ (ただし、Rは、Nd、Pr、Dy、Tb及びCeから選ばれる希土類元素の一種又は二種以上、Mは、Ti、V、Cr、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Mn、Cu、Ga及びSiから選ばれる元素の一種又は二種以上、x、y、z及びwは、それぞれ、 $5 \le x \le 10$ 、1 $\le y \le 9$ 、0. $1 \le z \le 5$ 、 $2 \le w \le 7$ 、 $9 \le (x+w)$ 、5 < (y+z) で表される組成割合となる様に、金属状元素原料及び/又は合金状原料を配合し、これを加熱溶解し、次いで、冷却固化することによって上記組成の粗合金が得られる。

【0060】前記金属状元素原料としては、市販のものを使用すればよく、その形態は、粉末、塊状、片状、板状等の各種形態のものがあり、そのいずれも使用することができる。

【0061】前記合金状原料としては、市販のものを使用すればよく、例えば、ボロン元素では、フェロボロン、希土類元素では、フェロネオジやミッシュメタルやジジムなどがある。その形態は、粉末、塊状、片状、板状等の各種形態のものがあり、そのいずれも使用することができる。

【0062】前記加熱溶解は、周知のアーク溶解法、高 周波溶解法などにより行うことができ、真空中やアルゴ ンガス等の不活性雰囲気中で行うのが好ましい。

【0063】次に、得られた前記粗合金を加熱溶解して合金溶湯とし、次いで、当該合金溶湯をノズルから流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体の表面に該液滴を衝突させることによって冷却凝固させて偏平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末を加熱処理によ50とし、次いで、当該急冷凝固物粒子粉末を加熱処理によ

り結晶化を行えば、本発明に係るボンド磁石用偏平木の 葉状希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を得ること ができる。

【0064】前記溶解温度は、合金組成に応じて決めればよく、通常は、前記粗合金の融点より50℃以上高い温度で加熱することが好ましい。

【0065】前記噴霧するガスとしては不活性ガスが好ましく、例えば、ヘリウムガス、アルゴンガス等である。好ましくはアルゴンガスである。噴霧するガスの圧力は、 $5\sim200\,\mathrm{kg}\,\mathrm{f}/\mathrm{cm}^2$ 、好ましくは $10\sim100\,\mathrm{kg}\,\mathrm{f}/\mathrm{cm}^2$ を越える場合には、冷却速度が速くなりすぎて液滴が回転冷却体に到達するまでに冷却疑固が生じる場合がある。

【0066】前記回転冷却体の形状は、円錐型又は円盤型である。好ましくは偏平木の葉状の粒子が得やすい円錐型である。また、前記回転冷却体の回転数は、1000~2000rpm、好ましくは3000~12000rpmである。回転数が1000rpm未満の場合には、得られる急冷凝固物粒子どうしが重なりやすくなり、塊状粒子となる場合があり、急冷による冷却凝固が20十分に行われず軟磁性非晶質相の生成が不十分となる。また、ボンド磁石の磁石粉末の密度が十分に得られなくなる。なお、円盤型の回転冷却体に合金溶湯の液滴を衝突させる場合には、その衝突箇所は、円盤型の回転冷却体の回転軸から円周方向にややずらした部分とすることが望ましい。

【0067】また、必要により、前記粗合金の加熱溶解、冷却固化と再度の加熱溶解及び回転冷却体による冷却凝固を同一装置内で連続して行ってもよい。

【0068】なお、事前に冷却固化させることなく同一 装置内で、前記金属状元素原料及び/又は前記合金状原 料の各原料の加熱溶解から、直接、回転冷却体による冷 却凝固を行ってもよい。

【0069】なお、回転冷却体による冷却凝固においては、初期に形成される液滴が比較的大きくなりやすいため、初期に得られる急冷凝固物粒子粉末を採取しないか又は事後に分級等により粗大粒子を除いておくことが望ましい。また、残存する合金溶湯が少なくなってきた場合には形成される液滴が微小化し、得られる急冷凝固物粒子粉末も微粒子化するので終了直前に得られる急冷凝固物粒子粉末は採取しないか又は分級等により微粒子成分を除去しておくことが望ましい。

【0070】前記回転冷却体による冷却凝固によって得られた急冷凝固物粒子粉末を構成する粒子は、主として 非晶質合金組織を含むものである。

【0071】この非晶質合金組織は、X線回折によりプロードなピークを示し、透過型電子顕微鏡(TEM)による電子線回折のハローパターンにより確認できる。なお、合金組成によっては、非晶質の合金組織が100%得られないで部分的に結晶相を含む場合もあり得るが、

12

本発明の目的が達成できるために十分な量であればよい。

【0072】この非晶質合金組織は軟磁性を有しており、その磁気的役割と共に、結晶化のための熱処理過程において、結晶粒の粗大成長を抑制し微細な結晶相の形成を可能とするため合金全体の硬磁性を向上させる重要な役割を担っている。

【0073】前記加熱処理は、600~850℃の温度範囲で行う。600℃未満の場合は、 $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相が十分析出せず、3. 5kOe以上の保磁力が得られない。850℃を越える場合は、 αFe 、固溶体(αFe とMとからなる固溶体)又は αFe と固溶体との混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相の粗大成長が顕著になり保磁力が発現しにくくなり、また、残存する軟磁性非晶質相の比率が著しく低下し、防錆性が発揮されにくくなる。なお、急冷凝固物粒子粉末の合金組成に応じて、良好な磁気特性を発現するための最適な加熱温度を適宜選択すればよい。

【0074】前記加熱処理における雰囲気は、得られる磁石合金粒子粉末の磁気特性を損なわない範囲であれば特に問題はないが、アルゴンガスなどの不活性雰囲気もしくは 10^{-1} Torr以下の真空中が望ましい。

【0075】前記加熱処理における加熱時間は、少なくとも10秒以上が望ましい。10秒未満では十分な軟磁性結晶相と硬磁性結晶相の析出がなされない傾向があり、また、長くとも1時間以内が望ましく、1時間をこえると軟磁性結晶相が粗大成長するため、いずれも3.5kOe以上の保磁力は得られない傾向がある。

【0076】前記加熱処理により、非晶質相から結晶相が生成される。この時、非晶質相を完全に結晶相にすることなく、全合金組織に対し10面積%以下の非晶質相を残留させるように加熱することが必要である。

【0077】非晶質相を残すための条件としては、結晶相の析出と成長が全面的に至らないように、前記加熱処理の条件を設定する必要がある。また、添加元素Mの効果により、非晶質相の安定化および析出相の成長抑制を図ることもできるので、適切な合金組成の設定も重要である。加熱処理法の例としては、フラッシュアニーリング法や急速加熱ー急速冷却法が挙げられ、合金組成によっては、通常の熱処理法でも十分である。

【0078】残留する非晶質相の存在割合は好ましくは 1~10面積%、より好ましくは9面積%以下である。 1面積%未満では前記の目的とする効果が得られず、防 錆性能の向上も期待できず、10面積%を越える場合に は、非晶質相と結晶相の間あるいは結晶相同士の間に働 く交換相互作用に起因する磁気的結合が弱められるから である。

【0079】次に、本発明に係るボンド磁石について述べる。

【0080】本発明に係るボンド磁石は、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂中に分散してなるものであって、該偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末が85~99重量%と残部が結合剤樹脂とその他添加剤とからなる。本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の好ましい割合は、成形法により若干異なるが、射出成形ボンド磁石の場合には、88~93重量%が好ましく、押出成形ボンド磁石の場合には、85~92重量%が好ましく、圧縮成形ボンド磁石の場合には、95~98.5重量%が好ましく、96~98.5重量%がより好ましく、カレンダー成形ボンド磁石の場合には、85~90重量%が好ましい。

【0081】本発明に係るボンド磁石は、残留磁束密度 Brが7.0kG以上、好ましくは7.2kG以上であり、保磁力iHcが3.5kOe以上、好ましくは3.7kOe以上を有し、最大エネルギー積(BH) maxが 9.5MGOe以上、好ましくは9.7MGOe以上、密度が $6.1g/cm^3$ 以上を有する。

【0082】なお、本発明に係るボンド磁石の耐食性は、80℃、90%相対湿度の環境下で、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間が少なくとも120時間以上が望ましく、130時間以上がより望ましい。

【0083】次に、本発明に係るボンド磁石の製造法について述べる。

【0084】本発明に係るボンド磁石は、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を結合剤樹脂と混合、混練し、該混練物を射出成形、押出成形、圧縮成形又はカレンダー成形等の周知の成形法で成形加工することにより得ることができる

【0085】前記結合剤樹脂としては、成形法によって種々選択することができ、射出成形、押し出し成形及びカレンダー成形の場合には熱可塑性樹脂が使用でき、圧縮成形の場合には、熱硬化性樹脂が使用できる。前記熱可塑性樹脂としては、ナイロン(PA)系、ポリプロピレン(PP)系、エチレンビニルアセテート(EVA)系、ポリフェニレンサルファイド(PPS)系、液晶樹脂(LCP)系、エラストマー系、ゴム系等の樹脂が使用でき、前記熱硬化性樹脂としては、エポキシ系、フェノール系等の樹脂を使用することができる。

【0086】前記本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の混合割合は、85~99重量%であり、最適な混合割合は、成形法により若干異なるが、射出成形においては、88~93重量%が好ましく、押出成形では85~92重量%が好ましく、たなレンダー成形では85~90重量%が好ましい。85重量%未満の場合には、磁石合金粒子粉末の割合が

14

少なすぎて十分な磁気特性を有するボンド磁石が得られない。前記各成形法における磁石合金粒子粉末の混合割合の上限は、それぞれの成形が可能な結合剤樹脂との混練物もしくは混合物の流動性や成形物の機械的強度の要求に基づいて決定することができる。

【0087】なお、ボンド磁石を製造するに際して、成形を容易にしたり、磁気特性を十分に引き出すために、必要により、結合剤樹脂の他に可塑剤、滑剤、カップリング剤など周知の添加物を使用してもよい。

【0088】これらの添加物は、目的に応じて適切なものを選択すればよく、可塑剤としては、それぞれの使用樹脂に応じた市販品を使用することができ、その合計量は使用する結合剤樹脂に対して0.01~5.0重量%程度が使用できる。

【0089】前記滑剤としては、ステアリン酸とその誘導体、無機滑剤、オイル系等が使用でき、ボンド磁石全体に対して0.01~1.0重量%程度が使用できる。

【0090】前記カップリング剤としては、使用樹脂とフィラーに応じた市販品が使用でき、使用する結合剤樹 20 脂に対して0.01~3.0重量%程度が使用できる。

【0091】前記混合は、ヘンシェルミキサー、V字ミキサー、ナウター等の混合機などで行うことができ、混練は一軸混練機、二軸混練機、臼型混練機、押し出し混練機などで行うことができる。

【0092】前記成形法により成形加工して得られた成形物は、常法に従って電磁石着磁やパルス着磁することにより、本発明に係るボンド磁石とすることができる。 【0093】

【発明の実施の形態】本発明の代表的な実施の形態は次 の通りである。

【0094】希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の粒子形状は、電子顕微鏡による外観観察を行って判断した。また、粒子粉末の平均長軸径、平均短軸径、平均厚さの算出は100倍に拡大した電子顕微鏡写真に示されている粒子30個について測定を行った結果により示した。

【0095】希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の合金組織の相構造は、高分解能透過型電子顕微鏡HR-TEM(日本電子株式会社製)、ナノビーム電子線回折装置(日本電子株式会社製)、エネルギー分散型X線分析装置EDX(日本電子株式会社製)及びX線回折装置(理学電機工業株式会社)(ターゲット:鉄)を用いて観察及び測定した。

【0096】前配合金組織の磁気構造は、上記ナノビーム電子線回折装置を用いた電子線回折によって結晶相の同定により磁気構造の確認とした。即ち、 α Fe型結晶やFe $_3$ B型結晶を同定することにより軟磁性であることを確認した。同様にして、 Nd_2 Fe $_14$ B $_1$ 型正方晶系結晶相を同定することにより硬磁性であることを確認した。

【0097】前記合金組織の面積%とは、透過型電子顕 微鏡(TEM)などによる観察において、2次元的視野 内における面積割合を言う。

【0098】希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末を 構成する粒子の化学組成は、化学分析により測定した値 で示した。

【0099】希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の磁気特性は、試料振動型磁力計VSM(理研電子株式会社製)で測定した値で示した。

【0100】また、ボンド磁石の磁気特性は、予め、約 10 50kOeのパルス着磁を施した後、B-Hカープトレーサー(東英工業株式会社製)で測定した値で示した。

【0101】希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末のキュリー点は、熱電対が付いた石英による試料支持棒と被測定試料を真空雰囲気にできるケース及び加熱ヒーターを試料振動型磁力計VSM(東英工業株式会社製)にセットした装置を用いて磁化の温度変化を測定することにより行った。即ち、被測定試料を10kOe以上の磁場で着磁した後、1kOeの磁場をかけながら温度を上昇させ、温度上昇に伴う磁化の値を記録し、明らかにハード相の磁化曲線がソフト相の磁化曲線に交差した点の温度をキュリー温度とした。

【0102】磁石合金粒子粉末の防錆性は、JIS Z2371に基づいた塩水噴霧試験方法で行った。即ち、一定時間毎に取り出して、走査型電子顕微鏡(SEM)により発錆の有無、発錆点の増加・拡大の様子を観察し、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間で示した。

【0103】ボンド磁石の耐食性は、80℃、90%相対湿度の環境下で、何時間で発錆するか、あるいは観察面において発錆点がどのように増加・拡大するかにより評価した。定量的には50倍の光学顕微鏡視野で、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間で示した。

【0104】ボンド磁石の密度は、硬化後の円柱状圧縮成形ボンド磁石を室温約25℃に十分冷却した後、その円柱の高さと断面直径をそれぞれ3箇所以上マイクロメーターにて測定しその平均値から円柱の体積を求めた。次に当該圧縮成形ボンド磁石の重量を電子天秤にて測定し、重量値(g)を体積値で除した値で示した。

【0105】以下、図1を用いて、希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末の製造について説明する。まず、原子比でNd7Fe83.5Co4Nb1Ga0.5B4の組成となるように、金属ネオジウム片(純度99.9%)(株式会社日本イットリウム製)169.2g、金属鉄片(電解鉄、純度99.9%)(株式会社昭和電工製)766.6g、金属コバルト片(純度99.9%、住友金属鉱山株式会社製)38.76g、金属ニオビウム片15.24g、金属ガリウム片5.73g及びクリスタルボロン片7.13gをそれぞれ秤量して、総重量を約1kgとした。これらをアルゴンガス減圧雰囲気中で高周

16

波溶解で鋳造して1kgの粗合金を得た。

【0106】次に、得られた粗合金1kgをアルミナ製ルツボ1に入れ、高周波加熱により1350℃で溶融させ、合金溶湯2とした。この合金溶湯2をアルミナ製ノズル3から流出滴下させ、滴下する合金溶湯2に対して噴霧化ノズル5よりアルゴンガス4を20kg/cm²の圧力で吹きつけ、合金溶湯の液滴6を形成させた。この合金溶湯の液滴6を該液滴の流動方向に配置されでいるロール径200mmφ、円錐角120度、回転数7200rpmの銅製の円錐形回転冷却体7に衝突させ、急冷凝固物粒子粉末8を得た。

【0107】得られた急冷凝固物粒子粉末は平均長軸径 250μm、平均短軸径150μm、平均厚さ15μm、短軸径と長軸径の比の平均値1.7、平均アスペクト比17の形状特性を有するものであった。この粉末を走査型電子顕微鏡による観察をしたところ、図2の走査型電子顕微鏡写真(×85)に示す通り、偏平木の葉状の粒子からなる急冷凝固物粒子粉末であることが確認できた。

【0108】得られた急冷凝固物粒子粉末は、X線回折の結果、全体的にブロードなピークを示していた。この X線回折結果と高分解能透過型電子顕微鏡観察結果とを 併せて検討した結果、少なくとも大部分が非晶質相から なっていることが確認できた。また、この合金粒子粉末 の構成元素比を化学分析により測定した結果、Nd7Fe83.5CoNb1Ga0B4 であり、ほぼ仕込み組成比に 等しいことが確認された。

【0109】上記急冷凝固物粒子粉末を 5×10^{-2} Tororの真空下で石英管に封入し、750℃の温度で3分間加熱処理を行った。この熱処理後の希土類一鉄ーボロン系合金粒子粉末は、X線回折測定の結果得られた図3に示すX線回折パターンの解析の結果、 α Fe型(Aで表したピーク)及びNd₂Fe₁₄B₁型(Bで表したピーク)の2種類の結晶構造に基づく明瞭なピークが検出された。また、図4に示す電子線回折パターンから、結晶性を示すスポットとともに非晶質相の存在を示すハローがあり非晶質相も幾分か残存していることが推認された。

【0110】上記熱処理後の希土類一鉄ーボロン系合金 粒子粉末について、高分解能透過型電子顕微鏡とナノビ ーム電子線回折装置及びエネルギー分散型X線分析装置 を用いて、その微細構造を観察した。その結果、合金組 織は、αFeを含む軟磁性結晶相が全結晶相に対し72 面積%程度であって、Nd₂Fe₁₄B₁を含む硬磁性結晶 相が全結晶相に対し28面積%程度であり、これら結晶 相の総和は、二次元的視野全体を100面積%とすると 全合金組織に対し91面積%であった。従って、残りの 9面積%は、軟磁性非晶質相であった。

【0111】また、αFeや固溶体を含む軟磁性結晶相 の結晶粒径は、20~45nmの範囲であって、Nd₂

【0112】上記熱処理後の希土類一鉄ーボロン系合金 粒子粉末の室温磁気特性を試料振動型磁力計で測定した 結果、保磁力iHcが4.7kOe、残留磁束密度Br が11.2kG、最大磁気エネルギー積(BH)_{max}が 17.4MGOeであった。

【0113】また、上記得られた希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末の防錆性能を調べるため、塩水噴霧試験を行い、12時間毎に取り出して偏平木の葉状の粒子表面に占める赤錆の面積比率を走査型電子顕微鏡で観察した。その結果、発錆が10面積%を占めるまでの経過時間は72時間後であり、上記希土類磁石合金粒子粉末が防錆性にも優れていることを確認できた。

【0114】上記希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉 20 末98gとエポキシ樹脂XW-2214(商品名、日本ペルノックス株式会社製)2gとを適量のメチルエチルケトンで溶かして希土類合金粒子粉末をよく混合した後、メチルエチルケトンを乾燥気化させ圧縮成形用の混合物(希土類合金粒子粉末98重量%、エポキシ樹脂2重量%に相当する。)とした。

【0115】上記混合物3.3gを直径10mmの円柱 状試料用プレス治具に入れ、約7ton/cm 2 の圧力 でプレスして直径10mm、長さ約7mmの円柱状圧粉 体を得た。

【0116】上記圧粉体を150℃で1時間加熱処理してエポキシ樹脂を硬化させ、密度6.3g/cm³の圧縮成形ボンド磁石を得た。

【0117】上記得られた圧縮成形ボンド磁石にパルス 着磁機で約50kOeの着磁を施した後、B-Hトレー サーで室温の磁石特性を測定した結果、残留磁束密度B rが9.1kG、保磁力iHcが4.6kOe、最大磁 気エネルギー積(BH) maxが10.5MGOeであった。

[0118]

【作用】本発明において、最も重要な点は、流出合金溶湯にガスを噴霧することにより合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固する前に、当該液滴の流動方向に配置された円錐型又は円盤型の回転冷却体を用いて冷却凝固させることにより偏平木の葉状の粒子からなる希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を粉砕の工程を必要とせず、極めて高効率に得ることができるという事実である。

【0119】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末は、粒子形状が曲 18

面でない偏平木の葉状であることから粉末の敷きつめ効果であるリーフィング効果に優れ、ボンド磁石製造時において高充填にすることができ、その結果、大きな飽和磁束密度を得ることができる。

【0120】また、防錆性に優れた希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末が得られる理由について、本発明者は、非晶質相が主として磁気的な役割を担う軟磁性結晶相や硬磁性結晶相の周囲を取り囲んで存在し、しかも、適度の量が安定して存在していることによるものと考えている。

【0121】なお、ボンド磁石用希土類磁石合金粒子粉末を作製する方法として、従来の単ロール方式で行われる場合には、厚さが不揃いで曲面をもった薄帯ができ、ボンド磁石製造時にはこれを粉砕して用いる必要がある。また、アトマイズ方式で行われる場合には、球状の粒子粉末が得られ、高密度に充填するには不適であり、これを粉砕した場合も不定形の粒子となり、高密度に充填するには適さないものである。

【0122】ところで、塗料用の顔料又はプラスチック用のフィラーとして硝子粉末、ステンレス粉末等の薄片状粉末を得る製造法(特開平2-34706号公報、特開平2-93007号公報)が知られている。かかる製造法においては、溶融物の液滴を傘型、ホーン型又は円盤状の回転冷却体によって冷却凝固させることにより薄片状粉末を得るものであって、塗膜面に平行に配列するリーフィング現象が良好に起こり塗膜面を隙間なく覆って良好な耐食性、耐候性を付与するものである。

[0123]

【実施例】次に、実施例並びに比較例を挙げる。

実施例1~27、比較例1~3;

【0124】<希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末の製造>

実施例1~27

製造合金組成及び合金粒子粉末の製造工程における回転 冷却体の回転数と噴霧アルゴンガス圧力及びその後の熱 処理温度を種々変化させた以外は、前記発明の実施の形 態と同様にして、希土類磁石合金粒子粉末を得た。

【0125】実施例1~27で得られた希土類磁石合金 粒子粉末は、前記発明の実施の形態と同様にして合金組 織の相構造を観察した。

【0126】その結果、 α Feを含む軟磁性結晶相が全結晶相に対し $18\sim75$ 面積%の範囲であって、 Nd_2 Fe $_{14}B_1$ を含む硬磁性結晶相が全結晶相に対し $25\sim82$ 面積%の範囲であり、これら結晶相の総和は、二次元的視野全体を100面積%とすると全合金組織に対し $90\sim99$ 面積%の範囲であった。従って、軟磁性非晶質相は、 $1\sim10$ 面積%の範囲であった。

【0127】また、 α Fe、固溶体(α FeとMとからなる固溶体)又は α Feと固溶体の混合相のいずれかの結晶相からなる軟磁性結晶相の結晶粒径は、 $5\sim100$

(11)

10

nmの範囲であって、 $Nd_2Fe_{14}B_1$ 型正方晶系結晶相からなる硬磁性結晶相の結晶粒径は、 $5\sim100nm$ の範囲であり、加熱処理前の非晶質相から熱処理により各相が析出し、結晶化していることが観察された。さらに、残存非晶質相には、希土類とBの各元素が濃縮され、それぞれ $10\sim15$ 原子%の範囲、 $7\sim9$ 原子%の範囲であることが分析結果から確認できた。

【0128】この時の主要製造条件を表1及び表2に、 得られた希土類-鉄-ボロン系磁石合金粒子粉末の諸特 性を表3及び表4に示す。

【0129】比較例1(単ロール式液体急冷法:日本規格協会発行「アモルファス金属のおはなし」(1988年)第36~37頁)

実施例20の合金組成とした以外は、前記発明の実施の 形態と同様にして合金容湯を得、該合金容湯をノズルからガス圧により流出させ、当該合金容湯の流出方向に配置され縦方向に回転するロール型の回転冷却体の円周表面に該容湯を薄く引き伸ばして薄帯状に冷却凝固させた。得られた冷却凝固物は厚み30~50μmの薄帯であった。当該薄体を機械粉砕とふるいを用いて500μm以下の粉末とした。この粉末は、電子顕微鏡観察の結果、粒子形状がガレキ状であった。得られたガレキ状粉末の製造条件及び諸特性を表2及び4に示す。** 20

*【0130】比較例2

実施例20の合金組成とし、且つ、急冷凝固物粒子粉末の生成にあたって流出合金溶湯にガスを噴霧しなかった以外は、前記発明の実施の形態と同様にして冷却凝固物を得た。この冷却凝固物は、100μm程度乃至1mm程度の不均一な厚みを有しており、波打つようにそれ曲がった板状形態を呈していた。当該凝固体を機械粉砕とふるいを用いて500μm以下の粉末とした。得られた粉末の製造条件及び諸特性を表2及び4に示す。

【0131】比較例3(ガスアトマイズ法: 丸善発行「金属便覧」(1990年発行第932~933頁) 実施例20の合金組成とした以外は、前記発明の実施の 形態と同様にして合金溶湯を得、該合金溶湯をノズルか ら流出させ、当該流出合金溶湯にガスを噴霧することに より合金溶湯の液滴を生成させ、当該液滴が凝固するま で衝突することのない程十分大きいチャンバー内を飛行 させた。上記液滴は飛行中に急冷凝固して落下した。得 られた物体は直径数μm乃至数百μmの範囲の広い粒度 分布を有する球状の粉末であった。得られた粉末の製造 条件及び諸特性を表2及び4に示す。

[0132]

【表1】

実施例及		回転荷	却体	噴霧アル									
び比較例	製造合金組成	回転冷却 体の形状	回転数 (rpm)	ゴンガス 圧力 (kgf/cm²)	加熱処理 温度(℃								
実施例1	Nd, Fest Cos Til B4	円錐型	7200	20	70								
実施例2	Nd, Fess Cos V ₁ B ₄	円錐型	7200	20	7(
実施例3	Nd, Fees Coss Crass B4	円錐型	7200	20	61								
実施例4	Nd, Fe83.5 Co2 Mn3.5 B4	円錐型	7200	20	- 68								
実施例5	Nd, Fesis Co, Cuos B4	円錐型	7200	20	61								
実施例6	Nd, Fe 83.5 Co Ca 2.5 B4	円錐型	7200	20	70								
実施例7	Nd, Fe ₈₂ Co _{6.5} Zr _{0.5} B ₄	円錐型	7200	20	7:								
実施例8	Nd, Fe83,5 Co4,5 Nb, B4	円錐型	7200	20	7:								
実施例9	Nd, Fe83,5 Cos.5 Moz B4	円錐型	7200	20	7(
実施例10	Nd, Fem Cos, Hfo. B	円錐型	7200	20	7-								
実施例11	Nd, Fess Cos Ta ₁ B ₄	円錐型	7200	20	7-								
実施例12	Nds Pr ₁ Fe ₂₀ Co ₄ W ₂ B ₄	円錐型	7200	. 20	7:								
実施例13	Nds Pr, Fess Cos.s Si.s B4	円錐型	7200	20	71								
実施例14	Nd ₆ Fe ₈₂ Co ₄ Nb ₁ V ₁ B ₆	円錐型	7200	20	7								
実施例15	Nd, Fe _{82,5} Co ₄ Nb ₂ Cu _{0,5} B ₅	円錐型	7200	20	7								
実施例16	Nd Fee Co Cr Mn B	円錐型	7200	20	7								
実施例17	Nd Pr Fems Co Ti Gaos B4	円錐型	7200	20	7								
実施例18	Nd, Pr, Fem Co4 Ta, Si, B4	円錐型	7200	20	6								
実施例19	Nd, Pr, Feer Co. Nb., Be, 5	円錐型	7200	20	7								
実施例20	Nd, Fesz, Co. Nb, Cu., B,	円錐型	12000	20	7								

【表 2】

(12)

21

22

-	希土類磁石合金粒子粉末	の製造条件	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
夷施例及		回転待	命却体	噴霧アル	
び比較例	製造合金組成	回転冷却 体の形状	回転数 (rpm)	ゴンガス 圧力 (kgf/cm²)	加熱処理 温度(*C)
実施例21	Nd, Fes2,5 Co. Nb, Cuo.6 B6	円錐型	1000	20	780
実施例22	Nd ₈ Fe _{80.5} Co ₄ Nb ₃ B _{6.5}	円錐型	7200	5	760
実施例23	Nds Fem Co4 Nb1.5 Ba5	円錐型	7200	10	760
実施例24	Nds Fems Co, Nb, Bas	円錐型	7200	- 20	760
実施例25	Nd ₈ Fe ₁₉ Co ₄ Nb _{2.5} B _{6.5}	円錐型	7200	20	760
実施例26	Nds, Fe 19,5 Co. Nb, B,	円錐型	7200	20	720
実施例27	Ndg Feng Co4 Nb1 B7	円錐型	7200	20	720
比較例 i	Nd, Fest Co. Nb, Cuo, B	東口-	ール式液体が	急冷法	780
比較例2	Nd, Fess, Co, Nb, Cuo, B6	円錐型	7200	20	780
比較例3	Nd, Fess. Co. Nb, Cuo, Bs	ガ :	スアトマイ	ズ法	780

[0134]

* *【表3】

									_	-						
, ,							41年日12	石合金物	子粉末の細	1415						
								##	成中の精]. 作] (c+d=)	00x)			14tt		防経性 (発経が10
实达例及 び比較的		平均县	平均證 難在	꾸견부	平均額 比 長	平均の	会会组成	12.0	18(a+b=1	10%)	数理性	残智症	保管数	最大等	417-12	面内なる点
VA	粒子形状	柳理	20	тĘ	经特征	兵略ゼ /厚さ	TEGA	飲蔵性稿 品物2 画物(現る性に ある 新聞	理機性結 品称: 面積(非品質 相配 西核	東密度 Br K	i H c kDe	\$'-@ (BH)nax (BCOo)	(E)	あるまでの 低温時 間) (時間)
夹笔的	保守木の差状	260	150	15	1.7	17	製造権成と同じ	12	28	91	9	10.8	4.0	15,2	128	6
英族的	発子木の実は	245	155	14	1.5		STHEALTH	74	26	94	5	11.1	4.0	16.5	121	6
英純9 0	長平木の湯ば	255	165	15	1.5	17	BOM SENT	16	25	95		0.0	5.0	16.9	342	8
高雄94	毎年末の割ば	255	115	17	1.8		Billiage Te	12	28	94	6	10.8	4.2	17.1	361	
英越鄉	毎甲木の製状	255	155	17	1.6	15	型連絡球と同じ	14	26	94	. 6	10.5	4.1	16.9	131	7:
其純的	毎平木の類状	215	165	13	1.5	15	副連絡成と同じ	75	26	92	8	10. 2	_ 1.2	15.4	360	6
表施例	毎甲木の美状	265	185	19	1.5	11	製造師成と同じ	70	20		10	2. 5	1.1	15.5	296	6
夹纯的	毎年本の業状	265	115	28	1.6	13	Billingerie	72	28	90	10	11.7	4.7	19.4	128	6
其其的	低平木の悪犬	336	236	35	1.4	10	思議組成と何じ	16	25	92	8	10, 7	4.1	16.7	386	6
再放例10	信や水の事状	285	185	18	1.5	16	製造組成と同じ			90	10	10.3	1.2	15.3	118	7
英篇的1	長平木の妻状	295	185	25	1.6	12	製造組成と同じ	14	26	91	9	9. 9	4.5	15.5	378	6
支統例2	保守木の美状	345	285	33	1.4	10	RUMERLING	10	30	91	9	10, 8	1.1	16,3	391	- 61
表施例3	漢字木の兼状	245	165	13	1.5	19	製造解焼と何じ	71	29	91		11. 1	4.7	17.2	132	
支統例14	傷乎木の禁状	265	205	24	1,4	12	製造機成と同じ	70	30	80	10	11.3	5.1	18,1	438	61
高陰的 15	気中水の海状	285	185		1.5	11	erement we	14	26	91	9	11.5	1.8	17.1	123	. 6
再度倒6	低平木の要は	245	155	14	1.6	18	思過機成と同じ		25	91		10.2	4.8	16.7	379	73
英庭的17	個甲木の製状	265	155	24	1.7	19	製造組成と同じ	13	27	95	5	10.5	4.8	17.0	386	6
支給例 8	気学水の美式	285	205	25	1.9	11	BUTTE	79	_20	91		10. 4	1.9	17.2	382	6
实定例9	傷乎木の美げ	315	205	28	1,6	11	到这种成长同步	12		90	10	10. 2	5.7	18.3	433	6
実施920	毎年本の無ば	120			1.3	20	型連続など同じ		26	90	10	10.3	3.9	13,5	430	8

[0135]

※ ※【表4】

							希士	可谓完全专	粒子铅末の	21神性						
实施依及		平均压	平均拉	平均厚	中均维比	平均73					00%)		磁管	#III	Γ	防護性 (最等が10
VHEN	粒子形状	動性 ル四	神程	7 7 7 m	長輪後/	へ"外比 基础型/ 厚さ	合金組成	以底性能 品相。 面包	東朝性郡 品掛 西脚	表情 動作 所体	軟粒性罪 品質相比 面描数	独立 は は は と と と と と と と と と と と と と と と と	保证力 iHc kOs	最大3% 4'-装 (DE) MAX (DEO ₂)	129-A TO (T)	西3Wを占めるまでの 軽速消 間) (円間)
突旋921	∰平木の葉 状	490	110	95	1,2	5,0	製造組成と対し	P	27	93	,	11.1	4, 1	10,9	127	
実施922	値や木の芸 状	470	425	g3	1.1	5, 1	型油田成 と同じ		31	A		10.3	4, 7	13.6	420	60
実施9023	偏平木の葉	429	154	80	1,2	5,4	製造組成と向じ	54	46	92	6	10.2	6, 3	17.4	401	60
天城921	偏平水の美 ぱ	333	210	30	1.0	9.3	製造組成 と同じ	43	57	93	,	9. D	6. 4	11. T	362	60
天路92 8	经 平太0.至	277	246	51	1,1	5.4	型透過点 と何じ	30	61	83		9.8	6.0	19, 2	382	
実験926	信甲水の製	290		34	1.0	8.5	製造組成と何じ	21	. 19	96	-	10.2	6.4	19.5	360	60
奔地 5欠7	保平木の東	325			2,1		製造場点 と何じ	18	82		,	9. 8	4,6	18, 2	280	60
+ + 7 0	1'月状粉末						間辺細点 と同じ	72	28	91		10.7	4,3	16, 8	420	50
9 4 62	そりまがっ た板状	_		_			製造物点 と何じ	73	27	92	В	10.0	3, 4	9.6	408	44
	17 to 10	_	_	_			製造機成 と同じ	כז	2,	92		9. 2	1.9	10.3	417	40

【0136】〈希土類ー鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末

が混合されているボンド磁石〉

実施例28~54、比較例4~6

用いる磁石合金粒子粉末の種類を種々変化させた以外

は、前記発明の実施の形態と同様にして、ボンド磁石を 50

得た。

【0137】この時の主要製造条件及び諸特性を表5に示す。

[0138]

【表5】

(13)

23

	-	ポンド戦羽の特性										
実験例及び 比93円	使用合金粒子粉 束の短期	保証力 i H c (Los)	通常建康密 度 Br (keauss)	最大均科*~ 筏(EE) aux (EEOs)	문 로 (e/ct)	耐食性 見録が10両 をあるまでの経 透料間 (時間)						
其地6位8	実施例1). 8	1.1	9.7	6,3	145						
英雄9党9	美施例?	3.7	0, 2	10.6	6.2	151						
实体(600	高時(ff)	4.8	7.9	18.1	5.3	180						
英純的	英茂伊1	1,0	3,5	10,6	5.1	161						
末院伊32	来放伤	3.0	7, 9	10.8	6.2	17:						
美姓963	实院例5	4.1	8. 1	9.5	6.2	144						
实施研究1	实施例7	1,1	1, 2	9.8	5,1	111						
XXECS	医院倒 图	4.5	د.و	11.3	6.3	15						
英雄968	美版例9	3, 9	7.9	10.7	6.2	14						
共施所37	实施例10	4, 2	7, 4	9,1	6,3	18						
再被908	実施例11	4.3	7.2	9.9	6.3	14						
天柱959	美統例12	9.3	1 7, 9	10.4	5,4	14						
英雄野40	本統例13	4.5	8. 2	11.0	6,2	14						
実施9941	実施例14	4.5	9,0	.11.4	6.5	_16						
实施例12	实院例15	<u></u>	8, 9	11.0	6.1	16						
実施963	事放例16		3.5	10.7	6.2	17						
天发疗14	美放例17		5 6.1	10-1	5.2	13						
实施例45	实统例18	4.3	1.0	11.0	6,3							
英域的16	英施例19	8,1	2 7.0	11.8	6.3	13						
突旋的17	実施例20	3.	7.1	9.6	6,4							
実施例出	李婧/621		5	10.8	6.3	13						
美院的 9	实院例22	9.0	<u> </u>	9,6	6.3	12						
类域部50	実施例23	6, 1	7 7,	11.2	6.3	$\overline{}$						
実験951	実施例24	6.1	7.4	11.3	6.3	1-1-						
实施例52	实施例28	6.	4 7. 1	12.1								
実施953	英雄伊26		4	12.5								
英規954	天放伊27	6.	1 7.	11.6	6.3							
158164 1	比較例1		5 7,	9.3								
tt91645	H: 81 (912	 	1 6.									
JE 929-19	H-91(91)	4.	5,	7.9	5.1	<u> </u>						

【0139】本発明の実施例で得られたボンド磁石は、保磁力iHcが3.7~6.4kOe、残留磁束密度Brが7.2~9.3kGauss、最大エネルギー積(BH)_{max}が9.5~12.5MGOe、密度が6.2~6.5g/cm³、耐食性が132~212時間であった。

[0140]

【発明の効果】本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状 希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末は、大きな残留 磁束密度Brと高い保磁力iHcを有し、その結果、最 30 大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、防錆性に優 24

れ、且つ、リーフィング効果に優れているから、高性能 ボンド磁石用材料として好適なものである。

【0141】そして、本発明に係るボンド磁石用偏平木の葉状希土類一鉄一ボロン系磁石合金粒子粉末は、希土類の量が10原子%未満と少ないものであるから、経済的、工業的に有利に得ることができる。

【0142】更に、本発明に係る偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を用いて得られるボンド磁石は、用いる偏平木の葉状希土類一鉄ーボロン系磁石 6金粒子粉末が上記諸特性を有することに起因して、大きな残留磁束密度Brと高い保磁力iHcを有し、その結果、最大磁気エネルギー積(BH)maxが大きく、且つ、耐食性に優れており、密度が大きいものであるから、小型化が可能であると共に各種用途に使用可能なものである。従って、本発明の産業利用性は非常に大きいといえる。

【図面の簡単な説明】

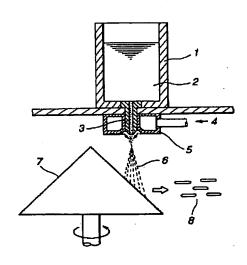
【図1】 発明の実施の形態における偏平木の葉状希土 類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を製造する装置の概 略図である。

【図2】 発明の実施の形態で得られた偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の 粒子形状を示した走査型電子顕微鏡写真(×85)であ る。

【図3】 発明の実施の形態で得られた偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の 結晶構造を示したX線回折パターンである。

【図4】 発明の実施の形態で得られた偏平木の葉状希 土類一鉄ーボロン系磁石合金粒子粉末を構成する粒子の 結晶構造を示した電子線回折パターンである。

【図1】



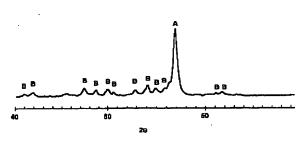
【図2】

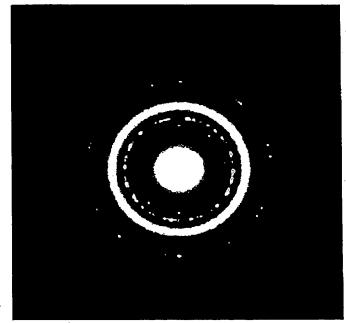


(14)

【図3】

【図4】





フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6 H 0 1 F 1/08

識別記号

FΙ H 0 1 F 1/08